This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.

PCT

NOTIFICATION OF RECEIPT OF RECORD COPY

(PCT Rule 24.2(a))

From the INTERNATIONAL BUREAU

OHMAE, Kaname 2F., Lions Bldg. Ohtemae 2-3-14, Uchihiranomachi Chuo-ku, Osaka-shi Osaka 540-0037 JAPON



Date of mailing (day/month/year) 27 October 2000 (27.10.00)		IMPORTANT NOTIFICATION		
Applicant's or agent's file reference		International application No.		
P23688-P0	(FP00039/pcT)	PCT/JP00/06971		

The applicant is hereby notified that the International Bureau has received the record copy of the international application as detailed below.

Name(s) of the applicant(s) and State(s) for which they are applicants:

MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD. (for all designated States except US) MATSUO, Mikiko et al (for US)

International filing date

05 October 2000 (05.10.00)

Priority date(s) claimed

05 October 1999 (05.10.99) 21 October 1999 (21.10.99)

Date of receipt of the record copy

by the International Bureau

19 October 2000 (19.10.00)

List of designated Offices

EP:AT,BE,CH,CY,DE,DK,ES,FI,FR,GB,GR,IE,IT,LU,MC,NL,PT,SE

National: KR, US

ATTENTION

The applicant should carefully check the data appearing in this Notification. In case of any discrepancy between these data and the indications in the international application, the applicant should immediately inform the International Bureau.

In addition, the applicant's attention is drawn to the information contained in the Annex, relating to:

time limits for entry into the national phase

confirmation of precautionary designations

requirements regarding priority documents

A copy of this Notification is being sent to the receiving Office and to the International Searching Authority.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer:

Susumu Kubo

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Telephone No. (41-22) 338.83.38

PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION CONCERNING SUBMISSION OR TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

OHMAE, Kaname 2F., Lions Bldg. Ohtemae 2-3-14, Uchihiranomachi Chuo-ku, Osaka-shi Osaka 540-0037 **JAPON**



Date of mailing (day/month/year) 09 January 2001 (09.01.01)	人的特別等相別
Applicant's or agent's file reference P23688-P0 FP00039 /F	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP00/06971	International filing date (day/month/year) 05 October 2000 (05.10.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 05 October 1999 (05.10.99)
Applicant	

MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD. et al

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	Priority application No.	Country or regional Office or PCT receiving Office	Date of receipt of priority document
05 Octo 1999 (05.10.99)	11/284360	JP	22 Dece 2001 (22.12.01)
21 Octo 1999 (21.10.99)	11/299657	JP	22 Dece 2001 (22.12.01)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Marc Salzman



Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Telephone No. (41-22) 338.83.38

PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

OHMAE, Kaname 2F., Lions Bldg. Ohtemae 2-3-14, Uchihiranomachi Chuo-ku, Osaka-shi Osaka 540-0037 JAPON



Date of mailing (day/month/year)

12 April 2001 (12.04.01)

Applicant's or agent's file reference

P23688-P0

FP00039/PC7

IMPORTANT NOTICE

International application No. PCT/JP00/06971

International filing date (day/month/year) 05 October 2000 (05.10.00) Priority date (day/month/year) 05 October 1999 (05.10.99)

Applicant

MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD. et al

 Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice: KR.US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

ΕP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 12 April 2001 (12.04.01) under No. WO 01/26425

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the **national phase**, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Authorized officer

J. Zahra

Telephone No. (41-22) 338.83.38

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

OIPE CLATE

.

Ą

特許協力条約に基づく国際出願願書 原本(出顧用) - 印刷日時 2000年10月04日 (04.10.2000) 水曜日 17時16分41秒

	731 (CEANA 7) - FI -	114 2555 10/3075 (01/201000) AVEC 114/30/3149
0	受理官庁記入欄	·
0-1	国際出願番号.	
0-2	国際出願日	
0-3	(受付印)	
	·	
	<u> </u>	
0-4	様式-PCT/RO/101	
	この特許協力条約に基づく国際	
	出願願書は、	
0-4-1	右記によって作成された。	PCT-EASY Version 2.91
		(updated 01.07.2000)
0-5	申立て	
	出願人は、この国際出願が特許協力条約に従って処理されるこ	i ·
	一とを請求する。	
0-6	出願人によって指定された受理	日本国特許庁(RO/JP)
	官庁	
0-7	出願人又は代理人の書類記号	P23688-P0
I	発明の名称	発光素子とその製造方法、およびそれを用いた表示装
	·	置、照明装置
11	出願人	
II-1	この欄に記載した者は	出願人である (applicant only)
II-2	右の指定国についての出願人で	米国を除くすべての指定国 (all designated States
. II 4 **	ある。	except US)
II-4ja	名称	松下電器産業株式会社
II-4en	Name	MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.
II-5ja	あて名:	571-8501 日本国
		大阪府 門真市
II-5en	444	大字門真1006番地
II Jeli	Address:	1006, Oaza-Kadoma,
		Kadoma-shi, Osaka 571-8501
11-6	日体 (日々)	Japan
II-7	国籍(国名)	日本国 JP
II-8	住所(国名)	日本国 JP
II-9		06-6908-5831
III-1		06-6906-8166
III-1-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である(applicant and inventor)
III-1-2	右の指定国についての出願人で	山嶼人及び光明有である(applicant and inventor)
	おる。	米国のみ (US only)
III-1-4ja	1 4 4 1	松尾 三紀子
		MATSUO, Mikiko
	7	631-0013 日本国
		607 0076 日本国 奈良県 奈良市中山町西
		が及来
III-1-5en		1-868-34, Nishi, Nakayamacho
		Nara-shi, Nara 631-0013
		Japan
III-1-6		DA国 JP
III-1-7		日本国 JP
	山川 (岡石)	

III-4-6

111-4-7

国籍(国名)

住所 (国名)

III-2 その他の出願人又は発明者 III-2-1 この欄に記載した者は 出願人及び発明者である(applicant and inventor) 111-2-2 右の指定国についての出願人で |米国のみ(US only) ある。 氏名(姓名) III-2-4ja 佐藤 徹哉 III-2-4en Name (LAST, First) SATO. Tetsuya III-2-5ja あて名: 571-0030 日本国 大阪府 門真市 末広町 31-12-203 III-2-5en Address: 31-12-203, Suehirocho Kadoma-shi, Osaka 571-0030 Japan 111-2-6 国籍 (国名) 日本国 JP 111-2-7 住所 (国名) 日本国 JP III-3 その他の出願人又は発明者 III-3-1 この欄に記載した者は 出願人及び発明者である(applicant and inventor) III-3-2 右の指定国についての出願人で 米国のみ(US only) ある。 III-3-4ja 氏名(姓名) 杉浦 久則 III-3-4en Name (LAST, First) SUGIURA, Hisanori III-3-5ja あて名: 573-0049 日本国 大阪府 枚方市 山之上北町 60-1-517 III-3-5en | Address: 60-1-517, Yamanouekitamachi Hirakata-shi, Osaka 573-0049 Japan 111-3-6 国籍 (国名) 日本国 JP 111-3-7 住所 (国名) 日本国 JP III-4 その他の出願人又は発明者 III-4-1 この欄に記載した者は 出願人及び発明者である(applicant and inventor) III-4-2 米国のみ(US only) 右の指定国についての出願人で ある。 III-4-4ja 氏名(姓名) 久田 均 III-4-4en Name (LAST, First) HISADA, Hitoshi III-4-5ja あて名: 565-0085 日本国 大阪府 豊中市 1-24 G-703 上新田 III-4-5en Address: G-703, 1-24, Kamishinden Toyonaka-shi, Osaka 565-0085 Japan

日本国 JP

日本国 JP

特許協力条約に基づく国際出願願書 原本(出顧用) - 印刷日時 2000年10月04日 (04.10.2000) 水曜日 17時16分41秒

IV-1	代理人又は共通の代表者、通知	
	のあて名	
	下記の者は国際機関において右 記のごとく出願人のために行動	代理人(agent)
IV-1-1 ja	する。 氏名(姓名)	大前 要
IV-1-1en		OHMAE, Kaname
IV-1-2ja	*	540-0037 日本国
IV-1-2en		大阪府 大阪市中央区 内平野町2-3-14 ライオンズビル大手前2階 2F., Lions Bldg. Ohtemae 2-3-14, Uchihiranomachi Chuo-ku, Osaka-shi, Osaka 540-0037
IV-1-3	電話番号	Japan 06-6946-3591
IV-1-4	ファクシミリ番号	06-6946-3593 06-6946-3593
<u>v</u>	国の指定	00-0940-3393
V-1	広域特許 (他の種類の保護又は取扱いを 求める場合には括弧内に記載す る。)	EP: AT BE CH&LI CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU MC NL PT SE 及びヨーロッパ特許条約と特許協力条約の締約国であ る他の国
V-2	国内特許	KR US
	【(他の種類の保護又は取扱いを 求める場合には括弧内に記載す る。)	
V-5	指定の確認の宣言 出現人は.9(b)の自己を に正述を に正述を に正述を に正述を に正述を に正述を に正述を に近述を に近述を に近述を に近述を に近述を にたこた に に に に に に に に に に に に に に に に に	
V-6	指定の確認から除かれる国	なし(NONE)
VI-1	先の国内出願に基づく優先権主	
VI-1-1	張 先の出願日	1999年10月05日(05.10.1999)
VI-1-2		特願平11-284360
VI-1-3	国名	付願中11 204300 日本国 JP
VI-2	先の国内出願に基づく優先権主 張	HTP VI
VI-2-1		1999年10月21日(21.10.1999)
		特願平11-299657
VI-2-3		日本国 JP
VII-1		日本国特許庁(ISA/JP)



11-1

記録原本の受理の日

P23688-P0

特許協力条約に基づく国際出願願書 原本 (出願用) - 印刷日時 2000年10月04日 (04.10.2000) 水曜日 17時16分41秒

		時 2000年10月04日 (04.10.2000) 水町			
VIII VIII-1	照合欄	用紙の枚数	添付された電子データ		
VIII-1 VIII-2	願書	4			
	明細書	50			
VIII-3	請求の範囲	11			
VIII-4	要約	1 p23688-p0.txt			
VIII-5	図面	20			
VIII-7	合計	86			
	添付書類	添付	添付された電子データ		
8-111V	手数料計算用紙	✓	-		
VIII-16	PCT-EASYディスク	_	フレキシブルディスク		
VIII-18	要約書とともに提示する図の番号	1			
VIII-19	国際出願の使用言語名:	日本語(Japanese)			
IX-1	提出者の記名押印	ILLA			
IX-1-1	氏名(姓名)	大前要写真			
		受理官庁記入欄			
10-1	国際出願として提出された書類 の実際の受理の日				
10-2	図面:				
10-2-1 10-2-2	受理された				
10-2-2	不足図面がある 国際出願として提出された書類				
	を補完する曹類乂は凶面であっ てその後期間内に提出されたも のの実際の受理の日(訂正日)				
10-4	特許協力条約第11条(2)に基づ く必要な補完の期間内の受理の 日				
10-5	査機関	ISA/JP			
10-6	調査手数料未払いにつき、国際 調査機関に調査用写しを送付し ていない				
国際事務局記入欄					



PCT

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条) [PCT18条、PCT規則43、44]

四願人又は10年人 の書類記号 P23688-P0	及び下記5を参照すること。				
国際出願番号 PCT/JP00/06971	国際出願日(日.月.年)0	5. 10. 00	優先日 (日.月.年)	05.10.99	
出願人(氏名又は名称) 松下電器産業株式会社					
	国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。 この写しは国際事務局にも送付される。				
この国際調査報告は、全部で4	ページである。 				
この調査報告に引用された先行	技術文献の写しも添	付されている。 	·		
 国際調査報告の基礎 a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。 □ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。 					
b. この国際出願は、ヌクレオチ □ この国際出願に含まれる		を含んでおり、次の	配列表に基づき	国際調査を行った。	
この国際出願と共に提出る	れたフレキシブルラ	ディスクによる配列	長		
出願後に、この国際調査機	と関に提出された書面	「による配列表 「	•		
出願後に、この国際調査権			こよる配列表	Α.	
				る事項を含まない旨の陳述	
I	□ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述				
2. 請求の範囲の一部の調査	ができない(第I欄	参照)。			
3. ② 発明の単一性が欠如して	いる(第Ⅱ欄参照)。	•			
4. 発明の名称は 🛛 🗓 出	願人が提出したもの	を承認する。			
□ 次	に示すように国際調	査機関が作成した。		•	
-					
5. 要約は	願人が提出したもの	を承認する。			
国		た。出願人は、この	国際調査報告の多	見則38.2(b)) の規定により 発送の日から1カ月以内にこ	
6. 要約書とともに公表される図は、 第 1 図とする。図 出願人が示したとおりである。 □ なし					
	願人は図を示さなか				
本	図は発明の特徴を一	層よく表している。			

第Ⅲ欄 要約 (第1ページの5の続き)

有機発光素子10は、基板1上に、陽極2と陰極4との間に発光領 域3を積層した構成であり、上記発光領域3は、ポリマー3Aと、発 光に寄与する物質である発光分子3Gと、電荷輸送物質3Fとを含ん でいる。

上記発光領域3の膜厚方向において、発光分子3Gと電荷輸送性物 質3Fは、陰極4に近い側では濃度が濃く、陽極2に近い側では濃度 が薄い。このような有機発光素子は、ポリマーあるいは電荷輸送性物 質を分散したポリマーに発光物質あるいは発光物質及び電荷輸送性物 質を浸透させることにより構成することができ、高い発光効率を実現 すると同時に容易にパターニングすることができる。

添付公開 類: 国際調査報告

2文字コード及び他の略語については、定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

(57) 要約:

有機発光素子10は、基板1上に、陽極2と陰極4との間に発光領域3を積層した構成であり、上記発光領域3は、ポリマー3Aと、発光に寄与する物質である発光分子3Gと、電荷輸送物質3Fとを含んでいる。

上記発光領域3の膜厚方向において、発光分子3Gと電荷輸送性物質3Fは、陰極4に近い側では濃度が濃く、陽極2に近い側では濃度が薄い。このような有機発光素子は、ポリマーあるいは電荷輸送性物質を分散したポリマーに発光物質あるいは発光物質及び電荷輸送性物質を浸透させることにより構成することができ、高い発光効率を実現すると同時に容易にパターニングすることができる。

明 細 書

発光素子とその製造方法、およびそれを用いた表示装置、照明装置

5

技 術 分 野

本発明は、平面光源や平板状ディスプレイ等として使用される発光素子に関する。

10 背景技術

電場発光素子は、自発光型のため視認性が高く、表示性能に優れ、高速応答が可能であり、さらには薄型化が可能なため、平板状ディスプレイ等の表示素子として注目を集めている。

中でも、有機化合物を発光体とする有機EL素子は、無機EL素 15 子と比較して低電圧駆動が可能なこと、大面積化が容易なこと、適 当な色素を選ぶことにより、所望の発光色を容易に得られること等 の特徴を有し、次世代ディスプレイとして活発に開発が行われてい る。

有機発光体を用いたEL素子としては、例えば厚さ1μm以下の20 アントラセン蒸着膜に30Vの電圧を印加することにより、青色発光が得られている (Thin Solid Films, 94(1982) 171)。しかし、この素子は高電圧を印加しても十分な輝度が得られないので、さらに発光効率を向上する必要があった。

これに対し、Tangらは、透明電極(陽極)、ホール輸送層、 電子輸送性の発光領域、仕事関数の低い金属を用いた陰極を積層することにより、低電圧化及び発光効率の向上を図り、10V以下の印加電圧で、1000cd/m²の輝度を実現した(Appl. Phys. Lett. 51(1987) 913)。尚、発光材としてはトリス(8-キノリノラト)アルミニウム錯体(以下、「Ala」)を用いている。Alaは、高

い発光効率と、電子輸送性能を合わせ持つ優れた発光物質である。 さらに、ホール輸送層と電子輸送層とで発光領域を挟み込んだる 層構造の素子(Jpn. J. Appl Phys., 27(1988) L269)や、発光領域に ドーピングされた色素 (Alqにクマリン誘導体やDCM1等の蛍 光色素)からの発光を得る素子(J. Appl. Phys., 65(1989)3610)が報 告されている。上記報告では、色素の適切な選択により発光色が変 わることが見い出され、さらに、発光効率も非ドープに比べ上昇す ることが明らかにされている。

- 方、上記構成の素子の各層の全てを真空蒸着法などのドライブ
10 ロセスにより形成するのに対し、スピンコート法やキャスト法など
の、いわゆる湿式成膜法で素子を形成する方法がある(特開平 3 - 7 9 0 号公報、特開平 3 - 1 7 1 5 9 0 号公報等)。

即ち、上記ホール輸送層、電子輸送層、発光領域を形成する材料の少なくとも1種以上を、ポリマーバインダーとともに適当な溶媒15 に溶解し、これを電極表面に塗布して発光領域を形成した後、さらに発光領域上に電極を蒸着法等で形成するものである。以下、こうして作製された有機発光素子を従来の積層型発光素子に対してポリマー分散型発光素子という。

ドライプロセスにより作製される有機発光素子と比べて、ポリマ 20 一分散型発光素子の有利な点として、以下の点が挙げられる。

- (1) 蒸着等のドライプロセスでは成膜が困難な材料も使用可能である。
- (2) ドライプロセスでは制御が困難な微量のドーピングも容易に実現できる。
- 25 (3) 大面積化が容易である。

- (4) 低コストで作製できる。
- (5) 複数の発光分子を導入することにより、容易に各発光分子からの発光を同時に得ることができる(白色発光が可能)。
 - (6) 従来の積層型発光素子は、各層がアモルファス状態である

のに対し、ポリマー分散型発光素子は、各材料がポリマーバインダーに分散されているため熱的に安定である。

従来のポリマー分散型発光素子の発光領域の構成としては、ポリビニルカルバゾールに発光分子としてペリノン誘導体あるいはトリス(8-キノリノラト)アルミニウムを分散したもの、ポリカーボネートに発光分子としてトリス(8-キノリノラト)アルミニウム及びテトラフェニルベンジジンを分散したもの、等がある(特開平3-790号公報、特開平3-171590号公報等)。

(第1の課題)

25

10 ポリマー分散型発光素子は、上記した利点がある反面、従来の積 層型発光素子に比べて発光効率が低いという課題がある。

即ち、積層型発光素子では、陽極からホール輸送層にホールが注入され、陰極から電子輸送性の発光領域あるいは電子輸送層に電子が注入される。そして、これらのホールと電子が発光領域中で再結合した際、励起子が形成され、この励起子が基底状態に遷移する際に発光する。ここで、電子輸送とホール輸送がそれぞれ機能分離されているため、電子・ホールの再結合は各層の界面近傍でのみ起こる。従って、励起子の生成が効率よく起こり、発光効率も向上する。

さらに、ホール及び電子の注入についても、陽極、陰極との注入 20 障壁が小さくなるように各電極に接する層の材料を選択すれば、注 入が容易に行え、低電圧での駆動が可能となる。

これに対して、ポリマー分散型発光素子の場合、主として単層構成のため、上記した積層型発光素子のようなホール・電子の再結合及び励起子の生成が局所的に起こるものではなく、また、電極からのホール・電子の注入障壁も大きいため、発光効率の向上が困難であった。

このように、発光領域内全体に発光サイトが分散するため、ホールと電子の注入及び輸送のバランスがとりにくく、その結果、再結合確率が低下し、十分な発光効率が得られない。従って、高効率化

の手段としては、ホールと電子の再結合領域をある特定領域に集約することが糸口となる。

前述したとおり、機能分離した層を積層する方法が有効であるが、 塗布形成される高分子系においては、上に積層する第2層目の高分 子溶液に含まれる溶媒は、成膜した第1層を溶解しない溶媒を選択 しなければならない。

また、積層膜の数が多くなるほど溶媒選択及び選択した溶媒に可溶な材料を選択する必要が生じる。その結果、材料選択の幅をさらに狭めてしまい、効果的な高効率化を実現できないという課題があった。

(第2の課題)

5

10

15

さらに、ポリマー分散型発光素子の課題として、カラーパネルを製造する際、パターニング(色の塗り分け)が困難であるという点が挙げられる。即ち、真空蒸着法などのドライプロセスでカラーパネルを製造する場合、基板上に蒸着マスクを設置することにより、所望の位置に各色の素子を形成することができるのに対し、スピッコート法やキャスト法などの湿式成膜法では、基板全面に発光領域を成膜するため、上記のようなパターニングができない。

これに対して、インクジェット法によるパターニングが提案され 20 ている(例えば、特開平10-12377号公報)。これは、ポリマーを含む発光領域の材料、あるいはポリマーの前駆体をインクジェット法によりノズルから吐出することにより、所望のパターンを形成するものである。

しかしながら、従来のインクジェット方式によるパターニングで 25 は、塗布するポリマー溶液等の粘度が大きいため、インクヘッドの ノズルが詰まってしまい、微細なパターンを形成することが困難で あった。

本発明は、上記課題を解決するものであり、ポリマー分散型の有機発光素子においても、高い発光効率を実現すると同時に容易にパ

ターニングができる有機発光素子及びその製造方法を提供するものである。

発明の開示

5 一群の本発明は、上記現状に鑑みなされたものであり、その目的は、高い発光効率を有する発光素子を提供することである。

尚、一群の本発明は、同一乃至類似した着想に基づくものである。 しかし、それぞれの発明は異なる実施の形態により具現化されるも のであるので、本明細書では、これらの一群の本発明を密接に関連 した発明ごとに第1の発明群、第2の発明群として区分する。そし て、以下では、それぞれの区分(発明群)ごとにその内容を順次説 明する。

(第1の発明群)

10

本願発明者らは、上記目的を達成するため鋭意検討を行った結果、 15 ポリマー分散型発光素子を製造する際、まず、ポリマー膜を形成し た後、これに発光分子、あるいは発光分子と電荷輸送材とを浸透さ せることにより、高い発光効率を得ると同時に容易にパターニング が行えることを見い出した。

具体的には、請求項1の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を20 有する発光素子であって、上記発光領域は、発光に寄与する物質と該物質を含有するための媒体とからなり、上記発光に寄与する物質は、上記発光領域の上記陽極側から上記陰極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴としている。

また、請求項2の発明は、請求項1に記載の発光素子であって、 25 上記発光に寄与する物質は、上記発光領域の上記陽極側または上記 陰極側のうちいずれか一方側が他方側よりも高濃度となるような濃 度分布を示し、上記一方側から他方側へ連続的に濃度が減少してい る構成であることを特徴としている。

上記構成とすることにより、発光領域中の発光に寄与する物質が

高濃度である部分で、上記陽極から発光領域に注入されるホールと上記陰極から発光領域に注入される電子とが再結合する。このようにして、上記ホールと上記電子との再結合領域を集約することができるので、電子とホールとの再結合効率が増大し、発光効率を向上することができる。

尚、上記「発光に寄与する物質」とは、後述する実施の形態に示すような、電荷を注入することによって発光する発光分子以外にも、例えば、有機パインダーや電荷輸送材料とダイマー、エキサイマーあるいはエキサイプレックスを形成することにより、これらからの発光を得るような物質も含む。ここで、上記ダイマーとは、基底状態で上記有機パインダーや電荷輸送材料と結合したものを意味し、また、上記エキサイマー、エキサイプレックスとは、電荷が注入されて励起した状態での上記有機パインダーや電荷輸送材料と反応したものを意味する。

5

15 また、請求項3の発明は、請求項1に記載の発光素子であって、 上記発光領域は、更に、電荷輸送性物質を含むことを特徴としている。

上記構成とすることにより、上記発光領域の電荷輸送性を更に向上でき、電子とホールとの再結合効率が向上する。

20 また、請求項4の発明は、請求項3に記載の発光素子であって、 上記電荷輸送性物質は、上記発光領域の上記陽極側から上記陰極側 に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴として いる。

上記構成とすることにより、発光領域内において、陽極側から陰 25 極側への方向(膜厚方向)において、ホール輸送能の大きい領域と 電子輸送能の大きい領域が形成されることとなり、電子とホールの 再結合効率が増大する。

また、請求項5の発明は、陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子であって、上記電荷輸送領域は、電荷輸送性物質と該

電荷輸送性物質を含有するための媒体とからなり、上記電荷輸送性物質は、上記電荷輸送領域の上記陰極側から陽極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴としている。

このような構成とすることによって、発光領域内において、ホール輸送能の大きい領域と電子輸送能の大きい領域が形成されることとなり、電子とホールの再結合効率が増大する。尚、上記構成の場合には、上記電荷輸送領域は発光特性を有し、発光領域の特性を兼ね備えるものである。

また、請求項6の発明は、請求項1に記載の発光素子であって、 10 上記発光領域は、上記発光に寄与する物質が存在しない領域を有す ることを特徴としている。

上記構成とすることにより、発光領域内でキャリア輸送能の異なる領域が形成されるので、電子とホールの再結合効率がさらに増大し、発光効率を向上することができる。

15 また、請求項7の発明は、請求項1に記載の発光素子であって、 上記発光領域中の、上記発光に寄与する物質の最大濃度を示す部分 は、上記陽極および上記陰極から離れていることを特徴としている。

上記構成のように、発光に寄与する物質の最大濃度を示す部分を両電極から離れた構成とするのは、上記発光に寄与する物質が上記陽極または陰極に近接していると、発光に寄与する物質が発光せずに消滅することがあるためである。尚、上記発光に寄与する物質の最大濃度を示す部分は、陽極と陰極との略中間に位置するのがよい。

20

25

また、請求項8の発明は、請求項5に記載の発光素子であって、上記電荷輸送領域は、上記電荷輸送性物質が存在しない領域を有することを特徴としている。

上記構成とすることにより、電荷輸送性物質の存在している領域と存在しない領域の境界において、陰極から注入される電子と陽極から注入されるホールとの再結合効率がさらに増大し、発光効率を向上することができる。

また、請求項9の発明は、請求項5に記載の発光素子であって、上記電荷輸送領域中の、上記電荷輸送物質の最大濃度を示す部分は、上記陽極および上記陰極から離れていることを特徴としている。

また、請求項10の発明は、照明装置であって、請求項1に記載 5 の発光素子を用いたことを特徴としている。

上記構成とすることにより、発光効率の向上した照明装置を提供することができる。

また、請求項11の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、上記発光領域は、発光に寄与する物質と該物10 質を含有するための媒体とよりなり、上記陰極面および上記陽極面に平行な方向において、上記発光に寄与する物質の濃度は、上記発光領域の略中央から周辺へ向けて略連続的に減少することを特徴としている。

また、請求項12の発明は、請求項11に記載の発光素子であっ

15 て、前記発光に寄与する物質を、上記陰極面および上記陽極面に平行な方向に、隣接して複数有する構成であり、該複数の発光に寄与する物質の発光色はそれぞれ異なることを特徴としている。

上記構成とすることにより、上記複数の発光に寄与する物質間の 境界付近の濃度は小さいので、各発光に寄与する物質が互いに混じ 20 り合うようなことはなく、従って、混色が小さい、フルカラー表示 性能に優れた発光素子を得ることができる。

また、請求項13の発明は、請求項11に記載の発光素子であって、上記発光領域は、更に、電荷輸送性物質を含むことを特徴としている。

25 また、請求項14の発明は、請求項13に記載の発光素子であって、上記電荷輸送性物質の濃度は、上記陰極面および上記陽極面に平行な方向において、上記発光領域の略中央から周辺へ向けて減少することを特徴としている。

また、請求項15の発明は、請求項11に記載の発光素子であっ

て、上記発光に寄与する物質は、上記発光領域の上記陰極側から上記陽極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴としている。

上記構成のように、発光領域内で発光に寄与する物質に濃度分布 5 を持たせることにより、上記ホールと上記電子との再結合領域を集 約することができるので、電子とホールとの再結合効率が増大し、 発光効率を向上することができる。

また、請求項16の発明は、請求項14に記載の発光素子であって、上記電荷輸送性物質は、上記発光領域の上記陰極側から上記陽10 極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴としている。

上記構成とすることにより、更に、電子とホールとの再結合効率が増大し、発光効率を向上することができる。

また、請求項17の発明は、請求項11に記載の発光素子であっ 15 て、上記発光領域は、上記発光に寄与する物質が存在しない領域を 有することを特徴としている。

また、請求項18の発明は、請求項11に記載の発光素子であって、上記発光に寄与する物質を含有するための媒体が、電荷輸送性能を有することを特徴としている。

20 また、請求項19の発明は、請求項11に記載の発光素子であって、上記発光に寄与する物質を含有するための媒体が、有機物からなることを特徴としている。

また、請求項20の発明は、請求項11に記載の発光素子であって、上記媒体がポリマーからなることを特徴としている。

25 上記構成のように、上記発光領域を有機物、より具体的にポリマーにより構成することによって、発光効率の向上した有機発光素子を提供することができる。

また、請求項21の発明は、表示装置であって、請求項11に記載の発光素子を用いたことを特徴としている。

上記構成とすることにより、発光効率の向上した表示装置を提供することができる。

また、請求項22の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは陰極上に媒体を配置する配置工程と、上記媒体中に発光に寄与する物質を含有させて発光領域を形成する含有工程と、を有することを特徴としている。

上記方法は、上記媒体を陽極または陰極上に配置する工程と、上記媒体中に発光に寄与する物質を含有させる工程とを有するので、予め発光に寄与する物質を含有させた媒体を、陽極または陰極上に配置することが困難な場合には有効な方法となり得る。

10

15

25

また、請求項23の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは陰極上に電荷輸送性物質を含有する媒体を配置する配置工程と、上記媒体中に発光に寄与する物質を含有させて発光領域を形成する含有工程と、を有することを特徴としている。

上記方法のように、上記媒体中に電荷輸送性物質を含有させることにより、電荷の注入及び輸送を効率よく行うことができる発光素子を得ることができる。

また、請求項24の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有す 20 る発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは陰極上に媒体を 配置する配置工程と、上記媒体中に発光に寄与する物質及び電荷輸 送性物質を含有させる含有工程と、を有することを特徴としている。

また、請求項25の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは陰極上に電荷輸送性物質を含有する媒体を配置する配置工程と、上記媒体中に発光に寄与する物質及び電荷輸送性物質を含有させる含有工程と、を有することを特徴としている。

上記配置工程における媒体中に含有されている電荷輸送性物質の電荷と、上記含有工程における電荷輸送性物質の電荷とは、同じで

あっても異なっていてもよい。

20

25

また、請求項26の発明は、陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは陰極上に集体を配置する配置工程と、上記媒体中に電荷輸送性物質を含有させる含有工程と、を有することを特徴としている。

また、請求項27の発明は、請求項23に記載の発光素子の製造方法であって、上記含有工程において、上記発光に寄与する物質を上記媒体中に浸透させることによって含有させることを特徴としている。

10 また、請求項28の発明は、請求項24に記載の発光素子の製造方法であって、上記含有工程において、上記発光に寄与する物質および上記電荷輸送性物質を媒体中に浸透させることによって含有させることを特徴としている。

上記方法によって、上記発光に寄与する物質、あるいは発光に寄 15 与する物質および電荷輸送性物質を、上記発光領域の上記陽極側か ら陰極側、あるいは、上記陰極側から陽極側に向けて、略連続的に 濃度分布をもたせた発光素子を得ることができる。

また、請求項29の発明は、請求項23に記載の発光素子の製造方法であって、上記含有工程において、上記発光に寄与する物質を溶媒に溶かして得られた溶液を、上記媒体に接触させることにより浸透させることを特徴としている。

また、請求項30の発明は、請求項24に記載の発光素子の製造方法であって、上記含有工程において、上記発光に寄与する物質および上記電荷輸送性物質を溶媒に溶かして得られた溶液を、上記媒体に接触させることにより浸透させることを特徴としている。

上記方法によっても、上記発光に寄与する物質、あるいは発光に寄与する物質および電荷輸送性物質を、上記発光領域の上記陽極側から陰極側、あるいは、上記陰極側から陽極側に向けて、略連続的に濃度分布をもたせた発光素子とすることができる。

また、請求項31の発明は、請求項27に記載の発光素子の製造方法であって、上記含有工程において、上記媒体中に発光に寄与する物質をインクジェット法により浸透させることを特徴としている。

上記方法とすることにより、発光に寄与する物質をインクジェット法により媒体中に浸透させるので、媒体の前駆体として粘度の大きいポリマーを用いた場合には、上記ポリマー溶液と発光に寄与する物質とをインクジェット法により塗布する必要はない。従って、インクジェットのノズルが詰まることなく、また、精細なパターンを容易に形成することができる。

10 (第2の発明群)

5

15

20

25

本願発明者らは、従来、有機層全体に拡散していた発光分子をある特定領域に集約すると共に、有機層の表面積を増大させることが高分子系有機発光素子の高効率化につながるという考えに基づき、多孔質化あるいは粗面化された有機層の表面または表面近傍に発光分子を分散させることにより、高輝度発光を実現することができ、上記課題を解決するに至った。

即ち、請求項32の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、上記発光領域は発光に寄与する物質を含み、上記陽極と上記陰極との間には、上記発光に寄与する物質を特定の領域に集約するための集約化手段を有することを特徴としている。

より具体的には、請求項33の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が多孔質化されており、上記発光領域の多孔質化された表面に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴としている。

また、請求項34の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が多孔質化されており、上記発光領域の多孔質化された表面近傍に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴

としている。

15

20

上記構成とすることにより、発光に寄与する物質を、ある特定領域、具体的には、多孔質化された発光領域の表面または表面近傍に集約することができ、また、発光に寄与する物質が存在する、ホールと電子との再結合領域の表面積を増大させることとなるので、高輝度発光を実現することが可能となる。

また、請求項35の発明は、請求項33に記載の発光素子であって、上記発光領域の多孔質化された表面に電荷輸送性物質を有する構成であることを特徴としている。

10 また、請求項36の発明は、請求項33に記載の発光素子であって、上記発光領域の多孔質化された表面に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を有する構成であることを特徴としている。

上記構成とすることにより、リーク電流を防止すると共にホールあるいは電子の注入及び輸送を効率よく行うことができる。更には、上記平坦化層により、近接する陽極または陰極との接合面を平滑に保持することができる。

また、請求項37の発明は、陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子であって、上記電荷輸送領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が多孔質化された構成であることを特徴としている。

このような構成とすることによって、電極 (陽極、陰極)から上記電荷輸送領域に注入される電荷の注入効率を向上することができてる。尚、上記構成の場合には、上記電荷輸送領域は、発光特性を有する領域であり、発光領域の特性を兼ね備えるものである。

25 また、請求項38の発明は、請求項37に記載の発光素子であって、上記電荷輸送領域は、ホール輸送領域であることを特徴としている。

また、請求項39の発明は、請求項37に記載の発光素子であって、上記電荷輸送領域は、電子輸送領域であることを特徴としてい

る。

10

15

25

また、請求項40の発明は、請求項33に記載の発光素子であって、上記発光領域が有機物からなることを特徴としている。

また、請求項41の発明は、請求項33に記載の発光素子であっ 5 て、上記発光領域がポリマーからなることを特徴としている。

また、請求項42の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が粗面化されており、上記発光領域の粗面化された表面に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴としている。

また、請求項43の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が粗面化されており、上記発光領域の粗面化された表面近傍に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴としている。

このような構成によっても、発光に寄与する物質が存在する、ホールと電子との再結合領域の表面積を増大させることとなるので、高輝度発光を実現することが可能となる。

また、請求項44の発明は、請求項42に記載の発光素子であっ 20 て、上記発光領域の粗面化された表面に、電荷輸送性物質からなる 平坦化層を有することを特徴としている。

また、請求項45の発明は、陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子であって、上記電荷輸送領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が粗面化された構成であることを特徴としている。

このような構成とすることによって、電極(陽極、陰極)から上記電荷輸送領域に注入される電荷の注入効率を向上することができる。また、粗面化された電荷輸送領域上に発光領域が配置されている場合には、上記発光領域と上記電荷輸送領域との接触面積が向上

するので、陽極から発光領域に注入されるホールの注入効率が向上する。

また、請求項46の発明は、請求項45に記載の発光素子であって、上記電荷輸送領域は、ホール輸送領域であることを特徴とする。また、請求項47の発明は、請求項45に記載の発光素子であって、上記電荷輸送領域は、電子輸送領域であることを特徴とする。

5

また、請求項48の発明は、請求項42に記載の発光素子であって、上記発光領域が有機物からなることを特徴とする。

また、請求項49の発明は、請求項42に記載の発光素子であっ
10 て、上記発光領域がポリマーからなることを特徴とする。

また、請求項50の発明は、表示装置であって、請求項33に記載の発光素子を用いたことを特徴とする。

また、請求項51の発明は、照明装置であって、請求項33に記載の発光素子を用いたことを特徴とする。

15 上記構成とすることにより、発光効率の向上した表示装置や照明 装置を提供することができる。

また、請求項 5 2 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは上記陰極上に、

20 上記発光領域を構成するための媒体を配置する媒体配置工程と、上記媒体の少なくとも一部を多孔質化する多孔質化工程と、を有することを特徴としている。

また、請求項53の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは上記陰極上に媒25 体を配置する媒体配置工程と、上記媒体の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方を多孔質化する多孔質化工程と、上記媒体の多孔質化された表面に、発光に寄与する物質を配置し、上記媒体と上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する配置工程と、を有することを特徴としている。

また、請求項54の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、上記媒体の陽極側あるいは陰極のうち少なくとも一方を多孔質化する多孔質化工程と、上記媒体の引き合有し、上記媒体の別で含有し、上記媒体の別で含有し、上記媒体と上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する含有工程と、上記発光領域の多孔質化された表面に電荷輸送性物質を配置する配置工程と、を有することを特徴としている。

5

上記方法とすることにより、発光に寄与する物質を、多孔質化さ
10 れた発光領域の表面または表面近傍に集約することができる。また、
発光に寄与する物質が存在する、ホールと電子との再結合領域の表面積を増大させることができるので、高輝度発光を実現した発光素
子を得ることができる。

また、請求項 5 5 の発明は、請求項 5 3 に記載の発光素子の製造 15 方法であって、上記発光領域の多孔質化された表面に、電荷輸送性 物質を配置する配置工程を有することを特徴としている。

また、請求項 5 6 の発明は、請求項 5 3 に記載の発光素子の製造方法であって、上記発光領域上に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を形成する平坦化層形成工程を有することを特徴としている。

- 20 上記方法のように、発光領域の上方に平坦化層を形成することにより、リーク電流を防止すると共にホールあるいは電子の注入及び輸送を効率よく行うことができると共に、近接する陽極または陰極との接合面を平滑に保持することができる発光素子を得ることができる。
- 25 また、請求項 5 7 の発明は、請求項 5 3 に記載の発光素子の製造方法であって、上記配置工程は、特定の溶媒に可溶な物質を含有する媒体を配置する工程であり、上記多孔質化工程は、上記溶媒により上記物質を溶出することにより多孔質化を行う工程であることを特徴としている。

また、請求項 5 8 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、上記媒体の一部を粗面化する粗面化工程と、を有することを特徴としている。

5 また、請求項 5 9 の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、上記媒体の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方を粗面化する粗面化工程と、上記媒体の粗表面に、発光に寄与する物質を配置し、上記媒体と上記発光に寄与する10 物質とにより発光領域を形成する配置工程と、を有することを特徴としている。

また、請求項60の発明は、陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、上記媒体の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方を粗面化する粗面化工程と、上記媒体の粗表面近傍に、発光に寄与する物質を含有させ、上記媒体と上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する含有工程と、を有することを特徴としている。

15

上記方法とすることにより、上記発光に寄与する物質を、粗面化 20 された発光領域の表面または表面近傍に集約することができ、また、 発光に寄与する物質が存在する、ホールと電子との再結合領域の表 面積を増大させることとなるので、高輝度発光を実現することが可 能な発光素子を得ることができる。

また、請求項 6 1 の発明は、請求項 5 9 に記載の発光素子の製造 25 方法であって、上記発光領域上に、電荷輸送性物質からなる平坦化 層を形成する平坦化層形成工程を有することを特徴としている。

上記方法とすることにより、リーク電流を防止すると共にホールあるいは電子の注入及び輸送を効率よく行うことができると共に、 近接する陽極または陰極との接合面を平滑に保持した発光素子を得

ることができる。

また、請求項62の発明は、請求項59に記載の発光素子の製造方法であって、上記粗面化工程は、ドライエッチングにより上記発光領域を粗面化する工程であることを特徴としている。

5 上記ドライエッチングにより、容易に発光領域の粗面化を行うことができる。

図面の簡単な説明

図 1 は、本発明の実施の形態 1 - 1 に係る有機発光素子の概略断 10 面図である。

図2は、本発明の実施の形態1-2に係る有機発光素子の構成を示す概略図であり、図2(a)は有機発光素子の概略概念図、図2 (b)は図2(a)のA-A線矢視断面図である。

図3は、本発明の実施の形態 1 - 2 に係る有機発光素子の製造方 15 法を示す概略断面図である。

図 4 は、本発明の実施の形態 1 - 2 に係る有機発光素子の製造方法の他の例を示す概略断面図である。

図5は、本発明の実施の形態1-2に係る有機発光素子の発光領域の濃度分布について説明するための概略図である。

20 図 6 は、本発明の実施の形態 1 - 3 に係る有機発光素子の概略断面図である。

図7は、本発明の実施の形態1-4に係る有機発光素子の概略断面図である。

図8は、本発明の実施の形態1-5に係る有機発光素子の概略断 25 面図である。

図9は、本発明の実施の形態1-5に係る有機発光素子の他の例を示す概略断面図である。

図 1 0 は、本発明の実施の形態 1 - 5 に係る有機発光素子の他の例を示す概略断面図である。

図 1 1 は、本発明の実施の形態 1 - 5 に係る有機発光素子のエネルギーダイアグラムである。

図12は、本発明の実施の形態1-5に係る有機発光素子のエネルギーダイアグラムである。

5 図 1 3 は、本発明の実施の形態 1 - 5 に係る有機発光素子のエネルギーダイアグラムである。

図 1 4 は、本発明の実施の形態 1 - 5 に係る有機発光素子のエネルギーダイアグラムである。

図 1 5 は、本発明の実施の形態 2 - 1 に係る有機発光素子の概略 10 断面図である。

図16は、本発明の実施の形態2-1に係る有機発光素子の製造方法を示す概略断面図である。

図 1 7 は、本発明の実施の形態 2 - 1 に係る有機発光素子の変形例を示す概略断面図である。

15 図 1 8 は、本発明の実施の形態 2 - 2 に係る有機発光素子の概略 断面図である。

図19は、本発明の実施の形態2-2に係る有機発光素子の製造方法を示す概略断面図である。

図 2 0 は、本発明の実施の形態 2 - 3 に係る有機発光素子の概略 20 断面図である。

発明を実施するための最良の形態

(第 1 の 発 明 群 に お け る 実 施 の 形 態)

以下、本発明の第1の発明群について図面に基づいて説明する。 さい、以下に示す実施の形態(第2の発明群でも同様)では、有機 発光素子について説明するが、上記発明の概念は、有機発光素子だ けではなく、例えば、有機バインダーに無機発光体を分散させて発 光領域を構成する無機発光素子等にも同様に適用することができる。

[実施の形態1-1]

図 1 は、本発明の実施の形態 1 - 1 に係る有機発光素子の概略断面図である。

図1に示すように、有機発光素子10は、基板1上に形成された陽極2と、上記陽極2に対向配置された陰極4と、上記陽極2と上記陰極4との間に配置された発光領域3と、を備えた構成である。

5

上記発光領域3は、ポリマー3Aと、発光に寄与する物質である発光分子3Gと、電荷輸送性物質3Fと、を含んだ構成である。尚、図1では、1種類の発光分子のみについて示している。

また、上記発光分子3G及び電荷輸送性物質3Fは、発光領域3の膜厚(陽極1から陰極4へ向かう)方向において濃度に分布がある。即ち、発光領域3内で、陰極4に近い側(図中上側)では発光分子3G及び電荷輸送材3Fの濃度は濃く、陽極2に近い側(図中下側)では濃度が薄い。また、好ましくは、発光領域3の膜厚方向において、上記発光分子3G及び電荷輸送性物質3Fが存在しいにおいて、上記発光分子3G及び電荷輸送性物質3Fが存在しい。

尚、上記発光分子 3 G及び電荷輸送性物質 3 Fが膜厚方向において 濃度分布があるとしたが、発光領域 3 内で、発光分子 3 Gのみが 20 膜厚方向において 濃度分布を示し、電荷輸送性物質 3 F は膜厚方向で均一に分布していてもよい。

また、発光領域3がポリマー3Aと発光分子3Gのみから構成され (電荷輸送性物質3Fは存在せず)、発光分子3Gが膜厚方向での濃度に分布を持つ有機発光素子としてもよい。

25 本発明の有機発光素子の発光機構は、以下の通りである。即ち、 図1に示した有機発光素子10において、陽極2に正の、陰極4に 負の電圧を印加すると、陽極2からホールが、陰極4から電子が発 光領域3に注入される。そして、注入されたホールは陰極4に、電 子は陽極2に向かって流れ出す。発光領域3中でホールと電子が再

結合し、これに応答して発光領域3中の発光分子3Gから蛍光あるいは燐光が発せられる。

ここで、発光の電流効率(注入された電流に対する発光の効率)を決定する主な因子として、以下の点が挙げられる。

- 5 (1) 注入電流に対するホールと電子の再結合効率
 - (2) 再結合に伴う発光分子の励起子生成効率
 - (3) 発光分子の励起子からの発光量子効率

上記のうち、(2)と(3)については、ほぼ発光分子そのものの性質で決定されるものである。

- 10 一方、(1)のホールと電子の再結合効率については、ホールと電子のバランスに最も影響を受ける。即ち、ホールと電子のバランスが悪ければ、過剰なキャリアは電極から注入されても発光領域中で再結合せずに反対側の電極まで到達してしまい、発光に寄与しない無駄な電流となる。
- 15 そこで、発光領域中での各キャリアの移動度を上げてやれば、ホールと電子のバランスよく流れ、発光効率も向上する。具体的には、ホールの移動度が 1 × 1 0 ⁻⁷ cm²/V·s 以上、電子の移動度が 5 × 1 0 ⁻⁸ cm²/V·s 以上であることが好ましい。
- また、上記した発光機構から考えると、発光領域内の膜厚方向に 20 おいて、ホール輸送能の大きい領域と電子輸送能の大きい領域が存 在する場合、具体的には発光領域内の陽極側がホール輸送能が大き く、陰極側が電子輸送能が大きい場合、それぞれ陽極と陰極から注 入されたホールと電子は上記両領域の界面付近で局所的に再結合す る。
- 25 従って、図1に示すように、発光分子3G及び電荷輸送性物質3 Fが膜厚方向で濃度分布を持つことにより、好ましくは、発光領域3の膜厚方向において、上記発光分子3G及び電荷輸送性物質3F が存在しない領域を有することにより、発光領域3内でキャリア輸 送能の異なる領域が形成されるため、上記(1)の再結合効率がさ

らに増大し、発光効率も向上する。

[実施の形態1-2]

õ

10

図2は、本発明の実施の形態1-2に係る有機発光素子の構成を示す概略図であり、図2(a)は有機発光素子の概略概念図、図2(b)は図2(a)のA-A線矢視断面図である。

図2に示すように、有機発光素子20は、基板21上にストライプ状に形成された陽極22と、該陽極22上に形成された発光領域23と、該発光領域23上に上記陽極22と直交するようストライプ状に形成された陰極24と、を備えた単純マトリックス型の構成である。

上記基板 2 1 は、本発明の有機発光素子 2 0 を坦持できるものであればよく、ガラスあるいはポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート、ポリエチレンテレフタレートなどの樹脂フィルムなどの透明基板、またはシリコンなどの不透明基板を用いることができる。

15 上記陽極 2 2 及び上記陰極 2 4 のうち少なくとも一方は、透明あるいは半透明である必要があり、そのどちらか一方あるいは両方の電極を通して発光領域 2 3 からの発光を外部に取り出す。

上記陽極 2 2 としては、通常、インジウムティンオキサイド(ITO)、酸化錫などの透明電極を用いることが多いが、Ni、Au、20 Pt、Pd などの金属電極を用いてもよい。ITO膜はその透明性を向上させ、または抵抗率を低下させる目的で、スパッタ、エレクトロンピーム蒸着、イオンプレーティングなどの成膜方法が採用されている。また、膜厚は必要とされるシート抵抗値と可視光透過率から決定されるが、有機発光素子では比較的駆動電流密度が高いたの決定されるが、有機発光素子では比較的駆動電流密度が高いたの決定されるが、有機発光素子では比較的駆動電流密度が高いたので、シート抵抗値を小さくするため 1 0 0 0 A以上の厚さで用いられることが多い。

上記陰極 2 4 としては、 A 1 、 A g 、 A u などの金属、 M g A g 合金、 A 1 L i 合金などの仕事関数の低い金属と比較的仕事関数が大きく安定な金属の合金、 L i / A 1 、 L i F / A 1 などの仕事関

数の低い金属と仕事関数の高い金属の積層電極などを用いることができる。これら陰極の形成には蒸着法やスパッタ法が好ましい。

尚、陽極22及び陰極24は、互いに直交したストライプ状の電極であり、選択された陽極及び陰極に順方向に電圧を印加することにより、両電極の交点の発光領域が印加電圧に応じた輝度で発光する。

5

10

また、本実施の形態では、下から基板21/陽極22/発光領域23/陰極24の順に積層されているが、必ずしもこの順に積層する必要はなく、下から基板21/陰極24/発光領域23/陽極22の順としてもよい。

また、基板21側の電極、即ち陽極22のみが透明で、陰極24 が不透明な場合、発光を外部に取り出すためには基板21も透明基 板である必要がある。

次に、上記発光領域23について説明する。上記発光領域23は、ポリマー23A、発光分子(赤)23R、発光分子(緑)23G、発光分子(青)23Bからなる。ポリマー23Aは、発光領域23の面内方向において連続的に配置されており、発光物質23R・23G・23Bは、上記陰極24および上記陽極22に平行な方向に、隣接して複数配置されている。また、上記発光物質23R・23G・2023Bの濃度は、それぞれ、上記陰極24および上記陽極22に平行な方向において、上記発光領域の略中央から周辺へ向けて略連続的に減少するような分布を有している。

次に、本発明の実施の形態 1 - 2 に係る有機発光素子の製造方法 について説明する。図 3 は、本発明の実施の形態 1 - 2 に係る有機 25 発光素子の製造方法を示す概略断面図である。

(1) まず、図3(a) に示すように、基板21上にスパッタ、エレクトロンビーム蒸着、イオンプレーティングなどの成膜法により、ITO等からなる陽極22を形成する。

(2) 次に、図3(b) に示すように、上記陽極22を所望のパ

ターン(ここではストライプ状)にパターニングする。例えば、! TO電極の場合、フォトレジストを用いて通常のフォトリソグラフ ィによりパターニングした後、ヨウ化水素酸等でエッチングを行う。

(3) 次に、図3 (c) に示すように、上記陽極22上に、例え ば、ポリーN-ビニルカルバゾール等からなるポリマー 2 3 A を成 5 膜する。成膜は、蒸着法、スパッタ法、塗布法など、いずれの方法 を用いてもよいが、主に塗布法により行う。即ち、ポリーN-ビニ ルカルバゾールをトルエンあるいはクロロホルム等の溶媒に溶かし た溶液を用いてスピンコート法等により、基板1上に塗布する。上 記ポリマー3Aの膜厚は特に制限しないが、好ましくは約500~ 3000Å程度がよい。

- (4)次に、図3 (d)に示すように、上記ポリマー23Aを成 膜した後、所望の位置に所望の発光色を持つ発光分子を浸透させる。 具体的には、RGBフルカラーパネルを作製する場合、まず赤色の 発光分子 2 3 R を溶媒に溶かした溶液を、インクヘッド 2 7 ··· を用 15 いてインクジェット法により吐出し、ITOからなるストライプ状 陽極22…のうち、赤色用の電極(2本おき)上に滴下し、浸透さ せる。
- (5)次に、図3(e)に示すように、同様に緑色の発光分子2 3 G の溶液をインクヘッド 2 7 を用いて緑色用のストライプ状陽極 20 2 2 上に吐出する。
 - (6) 次に、図3 (f) に示すように、青色の発光分子23Bの 溶液を同様に、青色用の陽極22上に吐出する。尚、赤、緑、青の 発光分子の滴下順に特に制約はなく、どの順番に滴下してもよい。
- また、発光分子を滴下した後、熱処理を行うことが好ましい。即ち、 25 熱処理することにより、発光分子23R・23G・23Bの、ポリ マー23Aへの浸透が促進できる。さらに、ポリマー23Aへの浸 透を促進するため、発光分子を溶かす溶媒として、ポリマー23A が可溶な液体を用いることが好ましい。



(7)次に、図3(g)に示すように、ストライプ状陽極22と 直交するように、ストライプ状の陰極24を形成する。成膜は、所 望のパターンを形成した蒸着マスクを用いて、蒸着法あるいはスパッタ法等により行う。

5 尚、本実施の形態 1 - 2 では、ポリマーに発光分子を浸透させる としたが、ポリマーに発光分子及び電荷輸送性物質を浸透させても よい。また、電荷輸送性物質を分散したポリマーに発光分子を浸透 させてもよい。

上記方法により、発光分子23R・23G・23Bをインクジェ 10 ット法によりポリマー中に浸透させるので、粘度の大きいポリマー 溶液をインクジェット法により塗布する必要はなくなる。従って、 インクジェットのノズルが詰まることはなく、発光分子を塗布する ことができ、そして、微細なパターンを形成することが可能となる。

次に、上記製造方法により作製された有機発光素子の発光領域の 15 構成について、図 5 を用いて説明する。図 5 は、本発明の実施の形態 1 - 2 に係る有機発光素子の発光領域の濃度分布について説明するための概略図である。

即ち、図 5 に示すように、発光領域 2 3 の面内方向(電極に平行な方向)においては、ストライプ状の陽極 2 2 … 上にそれぞれ発光 20 分子(赤) 2 3 R、発光分子(緑) 2 3 G、発光分子(青) 2 3 Bが分散されているが、各発光分子 2 3 R・2 3 G・2 3 Bの濃度分布は、各陽極 2 2 … の略中央上方位置において最大となり、各陽極 2 2 の両側に向かうに連れて、各発光分子 2 3 R・2 3 G・2 3 B の濃度は減少する。

25 このような構成であるので、各発光分子23R・23G・23B のそれぞれの境界付近の濃度は小さいので、各発光分子23R・23G・23B が混じり合うようなことはなく、混色が小さく、フルカラー表示性能に優れたものである。

25

さらに、上記ポリマー23A中に、インクジェット27…を用い

てインクジェット法により発光分子 2 3 R・ 2 3 G・ 2 3 Bを浸透させているので、上記発光分子 2 3 R・ 2 3 G・ 2 3 Bは、発光領域 2 3 の陰極 2 4 側の方が、陽極 2 2 側よりも濃度が高くなる。

よって、上記実施の形態 1 - 1 と同様に、本実施の形態 1 - 2 の 5 有機発光素子は、電子とホールとの再結合効率が増大し、発光効率 が向上する。

図4は、本発明の実施の形態1-2に係る有機発光素子の製造方法の他の例を示す概略断面図である。

図4 (c) までは、図3の場合と同様の工程であり、陽極2が形10 成された基板1上にポリマー3Aを形成する。

次に、発光分子3R・3G・3Bをポリマー3Aに以下の方法で 浸透させる。

まず、ITOからなるストライプ状陽極2のうち、赤色用の電極上のみ開口部を設けたマスク8を基板1上に設置した後、赤色発光分子を溶媒に溶かした溶液を用いて、図4(d)に示すように蒸気処理を行う。こうして、所望の位置に赤色発光分子3Rを浸透させる。

続いて、同様の方法で、図4(e)、(f)に示すように緑色発光分子3G、青色発光分子3Bを浸透させる。尚、赤、緑、青の発光20分子の蒸気処理の順に特に制約はなく、どの順番に行ってもよい。また、発光分子の蒸気処理後、熱処理を行うことが好ましい。即ち、熱処理により、発光分子3B~3Dの、ポリマー3Aへの浸透が促進できる。さらに、ポリマー3Aへの浸透を促進するため、発光分子を溶かす溶媒として、ポリマー3Aが可溶な液体を用いることが25好ましい。

最後に、図3の場合と同様に、ストライプ状陽極2と直交するように、ストライプ状の陰極4を形成する。

尚、上記ではポリマーに発光分子を浸透させるとしたが、ポリマーに発光分子及び電荷輸送材を浸透させてもよい。また、電荷輸送

材を分散したポリマーに発光分子を浸透させてもよい。

また、本発明に係る有機発光素子の製造方法の別の例は、印刷法により、発光分子をポリマー中に浸透させる方法である。

即ち、図4(d)~(f)で、発光分子3R・3G・3Bを蒸気 5 処理によりポリマー3Aに浸透させるのに代えて、発光分子の溶液 をオフセット印刷あるいはスクリーン印刷法を用いてポリマー3A 上に塗布し、浸透させるものである。

この場合も、上記と同様、発光分子の印刷後に熱処理を行うことが好ましい。さらに、発光分子を溶かす溶媒として、ポリマー3Aが可溶な液体を用いることが好ましい。また、ポリマーに発光分子を浸透させる代わりに、ポリマーに発光分子及び電荷輸送材を浸透させてもよく、電荷輸送材を分散したポリマーに発光分子を浸透させてもよい。

[実施の形態1-3]

15 図 6 は、本発明の実施の形態 1 - 3 に係る有機発光素子の概略断面図である。

本実施の形態 1 - 3 が上記実施の形態 1 - 2 と異なる点は、発光領域 2 3 中に発光分子 2 3 R・2 3 G・2 3 B以外に、電荷輸送性物質 2 3 E … が存在することである。ここで、ポリマー 2 3 A と電荷輸送性物質 2 3 E とは、発光領域 2 3 の面内方向において連続的に配置されている。言い換えれば、電荷輸送性物質 2 3 E は、ポリマー 2 3 A 中に均一に分散されている。発光分子 2 3 R・2 3 G・2 3 Bについては、上記実施の形態 1 - 2 と同様、各々のストライプ状の陽極 2 2 …上にそれぞれ分散されている。

25 [実施の形態1-4]

20

図7は、本発明の実施の形態1-4に係る有機発光素子の概略断面図である。

図7において、図6と異なる点は、電荷輸送材23Eが発光領域 23の面内方向において連続的に配置されているのではなく、発光

分子23R・23G・23Bと同様に、面内方向において濃度に分布を持つことである。即ち、発光分子23R・23G・23Bの濃度が大きい部分に電荷輸送性物質23Eも高濃度で存在する。

[実施の形態1-2~1-4に関する共通事項]

5 ポリマー材料としては、電荷輸送性のポリマーが好ましく、中でもホール輸送性のポリマーが好ましい。ホール輸送性のポリマーは、そのキャリア移動度が 1 × 1 0 ⁻⁷ c m²/V·s 以上のものが好ましく、特には、ポリーN-ビニルカルバゾールが好ましい。

ホール輸送性ポリマーを用いた場合、電荷輸送材としては、電子 輸送材を用いることが好ましい。さらに、電子輸送材のキャリア移動度は、5×10⁻⁸cm²/V·s以上のものが好ましい。特には、オキサ ゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、ピラジン誘導体、アルダジン誘導体、キノリノール錯体及びその誘導体が好ましい。また、電子輸送材の含有率は、上記ポリマーに対して30~120重量%であることが好ましい。即ち、含有率が30重量%未満では電子輸送能が十分でなく、120重量%より多ければポリマーへの分散性が悪くなる。

発光分子としては、ホール・電子再結合に応答して発光を示す蛍光物質あるいは燐光物質を用いればよく、特に強い蛍光あるいは燐光を示す物質としては、シアニン色素、メロシアニン色素、スチリル系色素、アントラセン誘導体、ポルフィリン誘導体、フタロシアニン誘導体、クマリン、DCM、ナイルレッドなどの色素及びレーザ色素を用いることができる。また、発光分子としては、該発光分子のイオン化ポテンシャルが上記ホール輸送性ポリマーのイオン化25 ポテンシャルよりも小さく、かつ該発光分子の電子親和力が上記電子輸送材の電子親和力よりも大きい物質が好ましい。

[実施の形態1-5]

図8~図10は、本発明の実施の形態1-5に係る有機発光素子の概略断面図である。図8~図10において、25はホール注入層、

2 6 は電子注入層、2 3 G は発光分子、2 3 H はホール輸送性材料、2 3 I は電子輸送性材料である。

上記ホール注入層 2 5 は、陽極 2 2 から発光領域 2 3 へのホール注入を補助する目的で挿入される。ホール注入層 2 5 としては、そのイオン化ポテンシャル (Ip(h))と、上記ポリマーのイオン化ポテンシャル (Ip(p))及び上記陽極のイオン化ポテンシャルあるいは仕事関数 (Ip(a))との関係が、Ip(a) < Ip(h) < Ip(p)となる材料を用いることが好ましい。特には、ポリアニリン誘導体、ポリチオフェン誘導体、アモルファスカーボンのうち、少なくとも1種からなることが好ましい。

また、上記電子注入層26は、陰極24から発光領域23への電子注入を補助する目的で挿入される。電子注入層26としては、その電子親和力あるいは仕事関数が、上記陰極の仕事関数よりも小さい材料を用いることが望ましい。特には、ジリチウムフタロシアニン、有機ホウ素錯化合物のうち少なくとも1種からなることが好ましい。

10

15

20

25

ホール輸送材23 Hは、ホール注入層と同様に陽極22から発光 領域23へのホール注入を補助する目的で導入される。ただしホー ル注入層25とは異なり、陽極22と発光領域23の間に層として 挿入されるのではなく、発光領域中に直接分散される。

ホール輸送材23Hとしては、そのイオン化ポテンシャルが、上記ポリマーのイオン化ポテンシャルよりも小さい材料を用いることが好ましい。また、ホール輸送材の含有率は、上記ポリマーに対して10~120重量%であることが好ましい。即ち、10重量%未満では十分なホール注入ができず、120重量%より多ければポリマーへの分散性が悪くなる。

上記ホール注入層 2 5、電子注入層 2 6、ホール輸送材 2 3 Hの導入による効果を、図を用いて説明する。図 1 1 ~図 1 4 は、本発明に係る有機発光素子のエネルギーダイアグラムである。

図11は、陽極/発光領域(ホール輸送性ポリマー+電子輸送材 + 発光分子 (発光材)) / 陰極の構成の有機発光素子、図12は、 陽極/ホール注入層/発光領域(ホール輸送性ポリマー+電子輸送 材+発光分子)/陰極の構成の有機発光素子のエネルギーダイアグ ラム及びその動作機構を表す。前述した通り、有機発光素子に電圧 5 を印加した場合、陽極からホールが、陰極から電子が発光領域に注 入される。さらに詳しくは、図11に示すように、両キャリアは注 入 障 壁 の よ り 小 さ い 物 質 、 即 ち ホ ー ル は 発 光 領 域 中 の ホ ー ル 輸 送 性 ポリマーに、電子は発光領域中の電子輸送材に注入される。ここで、 両キャリア(ホール及び電子)の注入障壁が小さいほど注入は容易 10 に起こり、駆動電圧は低下する。従って電流効率が同じでも、駆動 電圧の低減により、発光の電力効率(投入電力に対する発光の効率) を向上させることができる。そこで、例えばイオン化ポテンシャル が陽極とホール輸送性ポリマーの間にあるようなホール注入層を挿 入した場合、図12に示すようにホール注入障壁は緩和され、駆動 15 電圧も低減できる。さらに、図11に示すようにホール注入障壁が 電子注入障壁に比べて大きい場合、ホール注入障壁を小さくするこ とにより、ホール注入量と電子注入量のバランスがよくなるため、 前述したような効果で電流効率の向上も期待できる。また、図13 は陽極/発光領域(ホール輸送性ポリマー+電子輸送材+発光分 20 子)/電子注入層/陰極の構成の有機発光素子のエネルギーダイア グラムである。ホール注入障壁と同様に、電子注入障壁についても、 陰 極 に 比 べ て 小 さ い 電 子 親 和 力 を も つ 電 子 注 入 層 を 挿 入 す る こ と に より、図13に示すように障壁を小さくすることができ、駆動電圧 の低減及び発光効率を向上できる。一方、図14は陽極/発光領域 25 (ホ ー ル 輪 送 性 ポ リ マ ー + ホ ー ル 輪 送 材 + 電 子 輪 送 材 + 発 光 分 子) /陰極の構成の有機発光素子のエネルギーダイアグラムである。こ の場合、ホール輸送材のイオン化ポテンシャルがホール輸送性ポリ マーよりも小さいため、図に示すようにホールは陽極から直接発光

領域中のホール輸送材に注入され、ホール輸送性ポリマーに注入された場合に比べて注入障壁は小さくなる。従って、ホール注入層を挿入した場合と同様に、駆動電圧を低減できると同時に電流効率の向上も期待できる。

- 5 もちろん、上記構成の組み合わせ、即ちホール注入層及び電子注入層の両方を挿入、あるいは発光領域をホール輸送性ポリマー+ホール輸送材+電子輸送材+発光分子として、さらに電子注入層を挿入する、あるいは発光領域の膜厚方向において発光分子、各電荷輸送材の濃度が分布を持つ等の構成としてもよい。
- 10 尚、上記実施の形態 1 1 ~ 1 5 では、単純マトリクス方式の有機発光素子の例を示したが、例えば、薄膜トランジスタ上に上記構成の発光素子を形成し、アクティブマトリクス方式のディスプレイパネルとしてもよい。

次に、上記実施の形態に基づいた実験例について、さらに詳細に 15 説明する。

(実験例1)

上記実施の形態 1 - 1 で示した図 3 の工程に従い、有機発光素子を下記の通り作製した。

即ち、基板 1 として、厚さ 0 . 7 m m のガラス基板を用い、この 20 上に陽極 2 として、ITOをスパッタ法により成膜した。尚、ITOの膜厚は約 1 0 0 0 Å、シート抵抗は約 1 5 Ω / □とし、フォトリソグラフィーにより、幅 3 0 0 μ m のストライプ状にパターニングした。

次に、上記基板を洗浄、酸素プラズマ処理した後、ポリマー 3 A 2 5 としてポリーNービニルカルバゾール (PVK)(分子量約 2 8 0 0 0)を成膜した。PVKはホール輸送性ポリマーであり、そのキャリア移動度は約 2 × 1 0 ⁻⁶ c m²/V・s である。成膜は、PVK 3 0 0 m g をトルエン 3 0 m l に溶かした溶液を用いて、スピンコート法により行った。スピンコートは、スピ尚用いて密閉した状態

で 5 0 0 r p m・1 0 秒、1 0 0 0 r p m・3 0 秒の条件で行った。 次に、ホットプレートを用いて 1 1 0 ℃ で 1 分間熱処理を行った。 P V K の 膜 厚 は 約 1 0 0 0 Å であった。

次に、市販のインクジェットプリンターを用いて、発光分子を所望のITO電極上の位置に滴下し、発光領域を形成した。発光分子は、赤色用(3R)としてナイルレッドを、緑色用(3G)としてクマリン6を、青色用(3B)としてクマリン47を用いた。各発光分子は、それぞれ1mgをクロロホルム10mlに溶かした溶液を用いて、インクヘッド7から吐出した。各発光分子を滴下した際、

5

20

10 その都度ホットプレートを用いて110℃で1分間熱処理を行った。 最後に、陰極4としてLi/Al積層電極を真空蒸着法により成 膜した。成膜は、真空度約5×10⁻⁶Torrで行い、まずLi を約0.5Å/secのレートで10Å蒸着した後、Alを約30 Å/secで1500Å蒸着した。陰極の形状は、蒸着マスクによ り、陽極2と直交するストライプ状とし、幅は300μmとした。

各材料のエネルギーレベルについては、ITOのイオン化ポテンシャルが4.9 e V、P V K のイオン化ポテンシャルが5.6 e V、電子親和力が2.0 e V、ナイルレッドのイオン化ポテンシャルが5.3 e V、電子親和力が3.5 e V、クマリン6のイオン化ポテンシャルが5.4 e V、電子親和力が2.9 e V、クマリン47のイオン化ポテンシャルが5.4 e V、電子親和力が2.5 e Vである。Liの仕事関数が2.9 e V、Alの仕事関数が4.3 e Vである。

また、発光領域3中の発光分子の濃度分布を調べるため、クマリ 25 ン6を滴下した部分の膜厚方向の元素分析を行ったところ、クマリ ン6にのみ含有されるイオウの量が、陰極側から陽極側に行くにし たがって少なく、さらに陽極付近にはクマリン6は存在しないこと が分かった。

こうして作製した有機発光素子において、選択されたストライプ

状の陽極及び陰極間に順方向に10V程度の電圧を印加すると、両電極に挟まれた部分(画素)が、それぞれ発光分子に対応した色(ナイルレッド:赤、クマリン6:緑、クマリン47:青)で明るく発光した。即ち、所望の位置(画素)を所望の色で発光させることが可能な単純マトリクスディスプレイが作製できた。

また、各発光色の電流効率(cd/A)、輝度100cd/m²時の駆動電圧、及び輝度100cd/m²時の電力効率(lm/W)を表1に示す。

10 表 1

5

	電 流 効 率			駆動電圧			電力効率		
	(cd/A)			(100cd/m² 時)(V)			(100cd/m ² 時)(lm/w)		
	赤	緑	青	赤	緑	青	赤	緑	青
実験例 1	1.5	3.0	1.7	12.0	11.0	12.0	0.4	0.9	0.4
実験例 2	3.0	6.0	3.4	10.4	9.0	10.0	0.9	2.1	1.1
実験例 3	3.3	7.2	4.0	9.2	8.0	9.0	1.1	2.8	1.4
実験例 4	1.8	4.1	2.0	10.5	9.2	10.3	0.5	1.4	0.6
実 験 例 5	1.9	4.2	2.0	10.5	9.0	10.0	0.6	1.5	0.6
実験例 6	1.9	4.2	2.1	10.4	9.0	10.1	0.6	1.5	0.7
実験例 7	1.8	4.1	2.0	10.5	9.0	10.0	0.5	1.4	0.6
実験例8	1.7	4.0	2.1	10.2	8.8	9.9	0.5	1.4	0.7
実験例 9	1.8	4.5	2.2	10.3	8.9	9.9	0.5	1.6	0.7
実験例 10	3.5	7.1	3.8	9.0	7.6	8.7	1.2	2.9	1.4
実験例 11	1.6	3.2	1.5	12.0	11.0	12.1	0.4	0.9	0.4
実験例 12	3.0	6.1	3.2	10.4	9.0	10.1	0.9	2.1	1.0
実験例 13	3.4	7.0	4.0	9.2	8.0	9.1	1.2	2.7	1.4
実験例 14	1.5	3.1	1.6	10.5	9.2	10.2	0.4	1.1	0.5
実験例 15	3.0	6.1	3.0	10.5	9.0	10.0	0.9	2.1	0.9
実験例 16	3.5	7.2	3.9	10.4	9.0	10.1	1.1	2.5	1.2

(実験例2)

実験例1において、ポリマー3AとしてPVKを成膜する代わりに、2-(4-ピフェニル)-5-(4-tert ブチルフェニル)
15 -1,3,4-オキサジアゾール(PBD)を分散したPVKを成膜した。PBDは電子輸送材であり、そのキャリア移動度は約2×10-6cm²/V・sである。また、イオン化ポテンシャルは6.1eV、電子親和力は2.4eVである。成膜は、PVK300mg及びPBD180mgをトルエンとクロロホルム1:1の混合溶

媒30mlに溶かした溶液を用いて、実験例1と同じ条件でスピンコート法により行った。

この素子の特性を(表1)に示す。

(実験例3)

5 実験例1において、発光分子を滴下する代わりに各発光分子と P B D (電子輸送材) の混合溶液を滴下した。

即ち、1 mgのナイルレッド+PBD100mg、1 mgのクマリン6+PBD100mg、1 mgのクマリン47+PBD100mgをそれぞれトルエンとクロロホルム1:1の混合溶媒30mlに溶かした溶液をインクジェット法により、PVK上に滴下した。この素子の特性を(表1)に示す。

(実験例4)

10

実験例1において、陽極と発光領域の間にホール注入層を挿入した。

即ち、図8に示す素子構成とした。ホール注入層としては、市販のポリチオフェン誘導体を用いて、PVKを成膜する前にスピンコート法により形成し、膜厚は150Åとした。ここで使用したポリチオフェン誘導体のイオン化ポテンシャルは、5.3eVである。この素子の特性を(表1)に示す。

20 (実験例5)

実験例4のホール注入層として、ポリチオフェン誘導体の代わりに上記ポリチオフェン誘導体と同等のイオン化ポテンシャルを示す市販のポリアニリン誘導体を用いた。ポリアニリン誘導体の成膜は実験例2と同様に行い、膜厚は150Aとした。

25 この素子の特性を (表1) に示す。

(実験例6)

実験例4のホール注入層として、ポリチオフェン誘導体の代わりにアモルファスカーボンを用いた。アモルファスカーボンは、スパッタ法により形成し、膜厚は100Åとした。アモルファスカーボ

ンのイオン化ポテンシャルは、 5 . 2 e V である。

この素子の特性を(表1)に示す。

(実験例7)

実験例1において、発光領域と陰極の間に電子注入層を挿入した。 1 即ち、図9に示す素子構成とした。電子注入層としては、ジリチウムフタロシアニンを用い、PVK上に各発光分子を滴下した後、真空蒸着法により成膜した。さらに続けて陰極としてA1を成膜した。電子注入層及び陰極の形成は、ジリチウムフタロシアニンを約0.3 Å/secのレートで10Å成膜した後、A1を約30Å/sec で1500Å成膜した。ジリチウムフタロシアニンの電子親和力は3.0eVである。

この素子の特性を(表1)に示す。

(実験例8)

実験例7の電子注入層として、ジリチウムフタロシアニンの代わ 15 りにこれと同等の電子親和力を示すジソディウムフタロシアニンを 用いた。ジソディウムフタロシアニンの成膜は実験例7と同様に行 い、膜厚は10 A とした。

この素子の特性を(表1)に示す。

この素子の特性を(表1)に示す。

(実験例9)

実験例7の電子注入層として、ジリチウムフタロシアニンの代わりに4,4,8,8ーテトラキス(1 Hーピラゾールー1ーイル)ピラザボールを用いた。4,4,8,8ーテトラキス(1 Hーピラゾールー1ーイル)ピラザボールの成膜は実験例7と同様に行い、膜厚は10Åとした。4,4,8,8ーテトラキス(1 Hーピラゾールー1ーイル)ピラザボールの電子親和力は2.3 e Vである。

(実験例10)

実験例 3 において、ポリマー 3 A として P V K を成膜する代わりにホール輸送材として N , N・- ジフェニル - N , N・- ピス (3

ーメチルフェニル) - 1、1・-ビフェニルー4、4・-ジアミン(TPD)を分散したPVKを成膜した。即ち、図10に示す素子を作製した。TPDのイオン化ポテンシャルは5、4 e Vである。成膜は、PVK300mg及びPBD180mgをトルエンとクロロホルム1:1の混合溶媒30mlに溶かした溶液を用いて、実験例1と同じ条件でスピンコート法により行った。成膜後は、実験例3と同様に各発光分子とPBDの混合溶液を滴下した。

この素子の特性を(表1)に示す。

(実験例11)

5

図4の工程に従い、有機発光素子を作製した。図4(c)までの 10 工程を実験例1と同様に行った後、各発光分子を蒸気処理によりポ リマー3Aに浸透させ、発光領域を形成した。発光分子は、実験例 1 と同様、ナイルレッド、クマリン6、クマリン47を用いた。蒸 気処理は以下の通り行った。即ち、まず、 ITOからなるストライ プ状陽極2のうち、赤色用の電極上のみ開口部を設けたマスクを基 15 板上に設置した後、10mgのナイルレッドをトルエン10mlに 溶かした溶液を加熱して発生する蒸気にさらした。さらに、ホット プレートにより、110℃で1分間熱処理を行った。こうして、所 望の位置にナイルレッドを浸透させた。続いて、緑色用の電極上に 開口部が来るようにマスクを移動し、10mgのクマリン6をトル 20 エン10mlに溶かした溶液を加熱して発生する蒸気にさらし、1 1 0 ℃・1 分間熱処理した。続いて同様にマスクを移動した後、1 0 m g の ク マ リ ン 4 7 を ト ル エ ン 1 0 m l に 溶 か し た 溶 液 を 用 い て 蒸気処理し、110℃・1分間熱処理した。最後に、陰極24とし てLi/Al積層電極を実験例1と同様に真空蒸着法により成膜し 25 た。

この素子の特性を(表1)に示す。

(実験例12)

実験例11において、ポリマー3AとしてPVKを成膜する代わ

りに、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール (PBD)を分散したPVKを成膜した。成膜は、PVK300mg及びPBD180mgをトルエンとクロロホルム1:1の混合溶媒30m1に溶かした溶液を用いて、実験例1と同じ条件でスピンコート法により行った。

この素子の特性を(表1)に示す。

(実験例13)

5

実験例11において、発光分子の蒸気処理を行う代わりに各発光分子とPBDの混合溶液を用いて蒸気処理を行った。即ち、1 mg
10 のナイルレッド+PBD100mg、1 mgのクマリン6+PBD
100mg、1 mgのクマリン47+PBD100mgをそれぞれトルエンとクロロホルム1:1の混合溶媒30mlに溶かした溶液を用いて、PVK上に蒸気処理を行った。

この素子の特性を(表1)に示す。

15 (実験例14)

実験例1において、発光分子を滴下する代わりに印刷法により発 光分子を浸透させた。実験例1と同様の工程で基板上にPVKを成 膜した後、ナイルレッド1mgをトルエン10mlに溶かした溶液 を用いて、所望のITO電極上にスクリーン印刷法により塗布し、 ホットプレートにより10℃で1分間熱処理した。同様にクマリン 6、クマリン47それぞれ1mgをトルエン10mlに溶かした溶 液を用いて、所望のITO電極上にスクリーン印刷法により塗布し、

ホットプレートにより110℃で1分間熱処理した。最後に、陰極 24としてLi/A1積層電極を実験例1と同様に真空蒸着法によ

25 り成膜した。

20

この素子の特性を(表1)に示す。

(実験例15)

実験例14において、ポリマー3AとしてPVKを成膜する代わりに、2-(4-ピフェニル)-5-(4-tert ブチルフェニル)



- 1, 3, 4 - オキサジアゾール (PBD) を分散した P V K を 成膜した。 成膜は、 P V K 3 0 0 m g 及 び P B D 1 8 0 m g を トルエンとクロロホルム 1: 1 の混合溶媒 3 0 m 1 に溶かした溶液を用いて、実験 例 1 と同じ条件でスピンコート法により行った。

5 この素子の特性を (表 1) に示す。

(実験例16)

10

この素子の特性を (表1) に示す。

(第2の発明群における実施の形態)

第2の発明群の発光素子は、陽極と陰極との間に発光領域を有し、上記発光領域は発光に寄与する物質を含み、上記陽極と上記陰極との間には、上記発光に寄与する物質を特定の領域に集約するための集約化手段を有することを特徴としている。より具体的には、陽極と陰極との間に発光領域を有し、上記発光に寄与する物質を配置している。 15 第2の発明群の発光素子は、陽極と陰極との間は発光領域と上記陰極としている。より具体的には、陽極とき陰極との間に多孔質化あるいは粗面化された領域を有し、該多孔質化された領域の表面または表面近傍に、上記発光に寄与する物質を配置している。

上記のように、多孔質化あるいは粗面化された領域を有することにより、発光に寄与する物質をある特定領域(多孔質化あるいは粗 面化された領域の表面または表面近傍)に集約し、発光に寄与する物質が存在する、ホールと電子との再結合領域の表面積を増大させることとなるので、高輝度発光を実現することが可能となる。

また、上記構成の発光素子を、表示装置や照明装置に適用することにより、高輝度性能を有する表示装置や照明装置を実現すること

ができる。

õ

以下に示す実施の形態2-1では、発光領域を多孔質化した発光素子の構成、実施の形態2-2では、発光領域を粗面化した構成、さらに、実施の形態2-3では、電荷輸送領域を多孔質化あるいは粗面化した構成について具体的に説明する。

[実施の形態2-1]

図15は、本発明の実施の形態2-1に係る有機発光素子の概略断面図である。

図15に示すように、有機発光素子100は、基板(図示せぬ) 10 上に形成された陽極105と、上記陽極105に対向配置された陰極101と、上記陽極105と上記陰極101との間に配置された発光領域109と、上記陰極101と上記発光領域109との間に配置された平坦化層102と、を備えた構成である。

上記発光領域 1 0 9 は、上記陰極 1 0 1 側が多孔質化された有機 15 層 1 0 4 と、該有機層 1 0 4 の多孔質化された表面に配置された発光分子 1 0 3 …と、を備えている。

更に、上記有機層104上には、電荷輸送性物質からなる平坦化層102が形成され、該平坦化層102上に陰極101が積層されている。

20 上記構成のように、発光分子103…を、多孔質化により表面積を増大させた有機層104の表面上に集約すると共に、発光分子103…の存在するホールと電子の再結合領域を多孔質化し、表面積を増大させることにより、高輝度発光を実現することができる。また、上記多孔質化された有機層104の表面に電荷輸送性物質からなる平坦化層102を設けることにより、近接する電極(陰極101)との接合面を平滑に保持し、リーク電流を防止すると共にホールあるいは電子の注入及び輸送を効率よく行える。

尚、上記有機層104の多孔質内部に電荷輸送性物質を充填する ことによっても、ホールあるいは電子の注入及び輸送を効率よく行

ることができる。

5

10

25

上記発光分子103としては、クマリン6やDCM、フェノキサゾン9といったレーザー色素のような量子効率が1に近い色素が好ましい。この他にナフタレン、アントラセン、ピレン、ナフタセン等の縮合環及びその誘導体も好ましく、例えば、ルブレンも量子効率は1に近く有能な発光材料である。また、上記Alaやその誘導体、ベリリウムベンゾキノリン等の金属錯体も好ましい。

上記有機層104の多孔質化された内部に充填する、あるいは上記平坦化層102を構成する電荷輸送性物質は、多孔質化される有機層104が輸送する電荷とは逆極性の電荷を輸送する必要がある。

また、多孔質化される有機層104がホール輸送性有機層として形成された場合には、上記電荷輸送性物質として電子輸送材料が選ばれ、逆に、電子輸送性有機層として形成された場合には、上記電荷輸送性物質としてホール輸送材料が選ばれる。

- 15 電子輸送材料としては、多孔質内部に入りやすい低分子系材料が好ましく、 A l q 、 トリス (4 メチル 8 キノリノラト)アルミニウム等の金属錯体、 4 , 4 , 8 , 8 テトラキス (1 H ピラゾール 1 イル)ピラザボール等の電子不足化合物、 3 (2・-ベンゾチアゾリル)- 7 ジエチルアミノクマリン等が好ましい。
- 20 また、バソクプロイン、トリアゾール誘導体等のホールブロック機能を有する材料も好ましい。

また、ホール輸送材料としては、トリフェニルアミンを基本骨格として持つ誘導体が好ましい。例えば、特開平7-126615号公報記載のテトラフェニルベンジジン化合物、トリフェニルアミン3量体、ベンジジン2量体、特開平8-48656号公報記載の種々のトリフェニルジアミン誘導体、特開平7-65958号公報記載のMTPD(通称TPD)が好ましい。

また、多孔質内部に充填する場合には、電荷注入材料に置き換えることもできる。

電子注入材料としては、特願平11-214712号公報記載のジリチウムフタロシアニン、ジソディウムフタロシアニン、マグネシウムポルフィン、4、4、8、8-テトラキス(1H-ピラソール-1-イル)ピラザボール等が好ましい。ホール注入材料としては、銅フタロシアニン、5、10、15、20-テトラフェニル-21H.23H-ポルフィン銅等が好ましい(尚、後述する実施の形態2-2において、粗面化された表面を平滑化して10nm程度とする場合にも、電荷注入材料に置き換えることもできる)。

5

多孔質内部に充填する材料は、上記低分子材料の他、高分子材料
10 も選ぶことができるが、塗布だけでは十分に充填できない恐れがあるので、塗布後、ガラス転移点程度の熱処理等、細部に浸透させる
手段を施す必要がある(尚、後述する実施の形態2-2において、
粗面化された表面を充填する場合にも、高分子材料を選ぶことができる)。

- 15 上記有機層104を構成する材料としては、多孔質化を考慮すると有機高分子が好ましい。特に多孔質化する場合はウェットエッチング処理されることから高分子系有機化合物が選ばれる(尚、後述する実施の形態2-2において、粗面化された表面を充填する場合にも、有機高分子が好ましい)。
- 20 有機層を構成する有機高分子としては、ポリーpーフェニレンビニレン (PPV)、ポリビニルカルバゾール (PVK)、ポリメチルメタクリレート (PMMA)、ポリフルオレン等とその誘導体等、汎用的な材料を用いることができる。さらに、電荷輸送特性を向上させることを目的として、電子輸送材料やホール輸送材料を混合してもよく、前述したような汎用的な材料を利用することができる。

有機層の膜厚は、10~1000nmとすることが好ましい。多 孔質化される領域は有機層全体の厚みに対し1/3程度以内が好ま しく、特には5~50nmが好ましい。即ち、有機層の膜厚を10 nm以下と薄くすると、電圧を印加したときにショートしてしまい、

1000 n m以上とすると、印加電圧が高くなり、発光効率も低下してしまうためである。また、多孔質化される領域が有機層全体の1/3程度あるいは50 n m以上となると、有機層の密度が低密管が低下したり、膜の剛直性や基板との密度が低では前記しため、電荷輸送性能が低下したり、膜の剛直性や基板とのおような別果が現れにくい。(尚、後述する実施の形態2-2においてはある効果が現れにくい。(尚、後述する実施の形態2-2においてはおいてはおいてはなりに対した。)。塗布型の方とはおいてはあるが、ここで言うないであるが、ここで言うないがある。有機高分子膜はミクロに見た場合のことをいい、成膜された膜の多孔質にはマクロに見た場合のことをいい、成膜された膜の多孔質化あるいは粗面化とは、その均一に成膜された膜の表面粗さをらに増加させるものである。

次に、有機発光素子の製造方法について、図16を用いて説明す 15 る。図16は、本発明の実施の形態2-1に係る有機発光素子の製 造方法を示す概略断面図である。

(1) まず、図16(a) に示すように、基板106上に陽極1 05を形成した(陽極形成工程)。

(2) 次に、図16(b) に示すように、上記基板106上に媒 20 体104、を配置した。尚、上記媒体104、とは、有機高分子と、 多孔質化のため溶出可能な有機材料との2種類を溶媒に溶かして得 られた溶液を塗布して得られた塗布膜を意味する(媒体配置工程)。

(3)次に、図16(c)に示すように、上記媒体104°を加熱乾燥あるいは風乾等により乾燥させ、上記有機高分子は不溶で上記有機材料のみが可溶な溶媒によって、上記媒体104°を処理することにより、有機材料のみを溶出した。そして、有機材料の存在していた部分を空洞化することによって有機高分子層の多孔質化を行って、有機層104を形成した(多孔質化工程)。

25

尚、上記多孔質化工程において、有機層104の少なくとも一部、

25

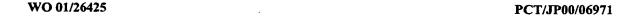


より具体的には、上記有機層104の陽極側105側あるいは陰極側101側のうち少なくとも一方を多孔質化すればよい。

- (4)次に、図16(d)に示すように、上記有機層104上に、 発光分子103…を分散配置した(発光分子配置工程)。
- 5 (5)次に、図16(e)に示すように、上記有機層104上に、 電荷輸送性物質からなる平坦化層102を形成した(平坦化層形成 工程)。
 - (6) そして、図16(f)に示すように、上記平坦化層102 上に陰極101を形成した(陰極形成工程)。
- 10 尚、有機層104の多孔質化の方法としては、上記の方法のような溶解度の差を利用する方法に限るものではない。例えば、紫外線照射によって有機高分子を硬化させることにより不溶化する方法や、加熱処理によって硬化させ、不溶化する方法などがある。
- また、有機高分子と共に混合する有機材料の割合は10~50% 15 が好ましい。なぜなら、有機材料の割合が10%よりも少ない場合、 膜(有機層)を十分多孔質化できず、50%よりも多い場合、膜の 密度が低下するため、膜全体の電荷輸送性能が低下したり、剛直性 や基板との密着性が弱くなってしまうためである。さらには、上記 有機材料の割合は20~30%が好ましい。
- 20 また、選ばれる有機材料は有機高分子の他、溶媒の選択が拡がる ように低分子量化したオリゴマー等を使用することができる。

発光分子の分散については蒸着方法が好ましい。また、溶液状にして蒸気処理することも可能である。多孔質化有機層の内部に浸透させる方法としても、発光分子分散後、蒸気処理を行うことが好ましい(尚、後述する実施の形態 2 - 2 においても、発光分子分散後、蒸気処理を行うことが好ましい)。

有機発光素子は、少なくとも一方の電極を透明ないし半透明にすることにより、面発光を取り出すことが可能となる。通常、正孔注入電極としての陽極にはITO(インジウム錫酸化物)膜を用いる



ことが多い。他に、酸化錫、Ni、Au、Pt、Pd等が挙げられる。ITO膜はその透明性を向上させ、あるいは抵抗率を低下させる目的で、スパッタ、エレクトロンビーム蒸着、イオンプレーティング等の成膜方法が採用されている。

また、 膜厚は必要とされるシート抵抗値と可視光透過率から決定されるが、 有機発光素子では比較的駆動電流密度が高いため、 シート抵抗値を小さくするため 1 0 0 n m 以上の厚さで用いられることが多い。

5

電子注入電極としての陰極には、Tangらの提案したMgAg 10 合金あるいはAlLi合金など、仕事関数が低く電子注入障壁の氏い金属と、比較的仕事関数の低い金属を有機層側によれることが多い。また、仕事関数の低い金属を有機層側に、この低仕事関数金属を保護する目的で、仕事関数の大きな積層してもよく、Li/Al、LiF/Alのような積層を展開してもよく、Li/Al、LiF/Alのよやスパッムフターシアニン、ができる。これら陰極の形成には蒸着と、ガーシャスできる。これら陰極の形成には蒸着とがカーカーシャスできる。これら陰極の形成には蒸着とがカーカーシャスできる。ですが、ジリチウムボルフィン、4、4、8、8一テトラキス(1日・ピラゾールー1ーイル)ピラザボール等の電をと構成できる。ので、酸化等の反応を受けにくく、寿命特性を向上できる。

基板は、上述した薄膜を積層した有機発光素子を担持できるものであれば良く、また、有機層内で生じた発光を取り出せるように透明ないし半透明の材料であれば良く、コーニング1737等のガラス、あるいはポリエステルその他の樹脂フィルム等を用いる。

25 また、図 1 7 は、本発明の実施の形態 2 - 1 に係る有機発光素子の変形例を示す概略断面図である。

図 1 7 に示すように、有機発光素子 1 0 7 は、有機層 1 0 4 の多孔質化された表面近傍に、発光に寄与する物質である発光分子 1 0 3 …を浸透させた構成である。尚、有機層 1 0 4 の多孔質化された

表面近傍に発光分子103…を浸透させる方法としては、蒸気処理によって行うことができる。

このような構成とすることによっても、発光分子103…を、多孔質化された有機層104の表面近傍に集約することができ、また、発光に寄与する物質が存在する、ホールと電子との再結合領域の表面積を増大させることとなるので、高輝度発光を実現することが可能となる。また、上記発光分子は、有機層104の表面および表面近傍の両方に配置されていてもよい。

(実験例2-1)

5

25

10 実験例2-1は、上記実施の形態2-1の有機発光素子の具体例を示すものである。以下に説明する。

ポリビニルカルバゾールと低重合度のブチラール樹脂(積水化学工業株式会社製、エスレックB、品番BL-S)とを重量比80:20の割合でトルエンに溶解して溶液を得た。

15 次に、上記溶液を、 I T O を成膜したガラス基板上にスピンコートし、膜厚 1 0 0 n m の 有機層を得た。

有機層を形成した I T O 基板を N , N - ジメチルホルムアミド中に浸漬し、ブチラール樹脂(エスレック B) のみを溶解除去した後、2 0 0 ℃の加熱乾燥を行い、多孔質化有機層を得た。

20 真空槽内で室温まで戻した後、発光分子としてレーザ色素クマリン6を0.01nm/sの蒸着速度で10秒間抵抗加熱による真空蒸着法により分散した。

引き続き、電子注入材料として4, 4, 8, 8ーテトラキス(1 Hーピラゾールー1ーイル)ピラザボールを0. 1 n m / s の 蒸 着速度で1分間蒸着した。

最後に、Al電極を1nm/sの蒸着速度で膜厚約100nmに 形成し、有機発光素子を得た。

この素子の断面をSEMで観察したところ、直径3~6nm程度の多孔質膜が形成され、多孔質部分を電子注入材料が充填している

ことを確認した。この素子に直流電圧を印可して評価したところ、 クマリン 6 の緑色発光が得られ、表 2 に示すように、電流効率は 8 . 0 c d / A で、安定に光り続けた。

表 2

	電流効率(cd/A)
実験例2-1	8.0
実験例2-2	8.2
実験例2-3	7.5
実験例2-4	3.2

5

10

15

25

(実験例2-2)

実験例2-2の有機発光素子は、実験例2-1の電子注入材料の蒸着において、多孔質内を充填する代わりに平坦化層を設けることを目的として、4,4,8,8-テトラキス(1 H-ピラゾールー1-イル)ピラザボールを0.1 nm/sの蒸着速度で2分間蒸着し平坦化層を得た。それ以外は、実験例2-1と同様にして作製した。

この素子の断面をSEMで観察したところ、直径3~6mm程度の多孔質膜上に、平坦化層が形成されていることを確認した。この素子に直流電圧を印可して評価したところ、クマリン6の緑色発光が得られた。また、表2に示すように、電流効率は8.2cd/Aで、安定に光り続けた。

(実験例2-4)

実験例 2 - 4 は、上記実験例 2 - 1 、 2 - 2 との比較するための 20 もの(有機層の多孔質化をおこなっていない構成)である。

即ち、ポリビニルカルバゾールと、電子輸送材料として2-(4-ビフェニリル)-5-(4-t-ブチルフェニル)-1、3、4-オキサジアゾールと、発光分子料としてクマリン6とを重量比100:40:0.2の割合でトルエン: THF=1:1混合溶媒中に溶解して溶液を得た。

その後、上記溶液を、ITOを成膜したガラス基板上にスピナー

で塗布し、膜厚100nmの有機層を形成した。

この上に電子注入電極として 1 n m の L i と A l からなる陰極を 1 0 0 n m 形成し、有機発光素子を得た。

この素子に直流電圧を印可して評価したところ、クマリン6の緑 5 色発光が得られ、表2に示すように、電流効率は3.2cd/Aで あった。

このように、有機層を多孔質化した有機発光素子は、多孔質化しない場合に比較して、飛躍的に電流効率が向上した。

[実施の形態2-2]

15

10 本実施の形態 2 - 2 は、発光領域を粗面化した構成の有機発光素子に関するものである。図 1 8 は、本発明の実施の形態 2 - 2 に係る有機発光素子の概略断面図である。

図18に示すように、有機発光素子110は、陽極105と、上記陽極105に大向配置された陰極101と、上記陽極105と上記陰極101との間に配置された発光領域113と、上記陰極101と上記発光領域113との間に配置された平坦化層102と、を備えた構成である。

上記発光領域 1 1 3 は、上記陰極 1 0 1 側が粗面化された有機層 1 2 0 と、該有機層 1 2 0 の粗面化された表面に配置された発光分 20 子 1 0 3 … と、を備えている。

更に、上記有機層 1 2 0 上には、電荷輸送性物質からなる平坦化層 1 0 2 が形成され、該平坦化層 1 0 2 上に陰極 1 0 1 が積層されている。

上記構成のように、発光分子103…を粗面化により表面積を増 25 大させた発光領域113(有機層120表面)に集約すると共に、 発光分子103…の存在するホールと電子の再結合領域を粗面化し、 表面積を増大させることにより、高輝度発光を実現することができ る。尚、上記実施の形態2-1の場合と同様に、有機層の表面および に発光分子を浸透させた構成としてもよいし、有機層の表面および



表面近傍の両方に発光分子を配置してもよい。

次に、有機発光素子の製造方法について図19を用いて説明する。図19は、本発明の実施の形態2-2に係る有機発光素子の製造方法を示す概略断面図である。

- 5 (1) 上記実施の形態 2 1 で示した製造方法の工程 (1) と同様に、基板 1 0 6 上に陽極 1 0 5 を形成した (図 1 9 (a))。
 - (2) 次に、上記陽極 1 0 5 上に有機層を形成する有機高分子によって媒体である塗布膜 1 2 0 'を形成した(図 1 9 (b))。
- (3) 次に、上記塗布膜 1 2 0 ° を、酸素ガスを導入したリアク 10 ティブイオンエッチング (RIE) 等により、ドライエッチングを 行い、塗布膜 1 2 0 ° 表面を粗面化し、有機層 1 2 0 を形成した(図 1 9 (c))。
- (4)次に、上記有機層120の粗面化した表面上に、発光分子 103を分散配置させた(図19(d))。尚、上記ドライエッチン がは、バレル型、平行平板型等の汎用的な型式で行ってよく、また 有機層の状態によってはArガス等も同時に導入するなどしてよい。 (5)次に、上記有機層120上に、上記実施の形態2-1と同様にして、電荷輸送性物質からなる平坦化層102を形成した(図
- 20 (6) 次に、上記平坦化層 1 0 2 上に陰極 1 0 1 を形成した (図 1 9 (f))。

(実験例2-3)

1 9 (e)).

実験例2-3は、上記実施の形態2-2の有機発光素子の具体例を示すものである。即ち、ポリビニルカルバゾールをトルエンに溶 25 解した溶液を、ITOを成膜したガラス基板上にスピンコートし膜 厚100nmの有機層を得た。

次に、有機層を形成したITO基板を、平行平板型のドライエッチング装置中で、酸素流量60sccm、圧力40mTorr、高周波出力100Wの条件で1分間の粗面化処理を行った後、真空槽

内に配置した。

5

次に、発光分子としてレーザ色素クマリン6を0.01nm/sの蒸着速度で10秒間抵抗加熱による真空蒸着法により分散した。引き続き、電子注入材料として4,4,8,8ーテトラキス(1H-ピラゾールー1-イル)ピラザボールを0.1nm/sの蒸着

最後に、Al電極を1nm/sの蒸着速度で膜厚約100nmに 形成し、有機発光素子を得た。

この素子の断面をSEMで観察したところ、有機層には:3 nm 10 程度の粗表面が形成され、電子注入材料による平坦化層が形成され ていることを確認した。この素子に直流電圧を印可して評価したと ころ、クマリン 6 の緑色発光が得られた。また、上記表 2 に示すよ うに、電流効率は 7 . 5 c d / A で、安定に光り続けた。

このように、実験例2-3に示す有機発光素子は、有機層を粗面 15 化することにより、実験例2-4に示す有機発光素子に比較して、 電流効率が飛躍的に向上した。

[実施の形態2-3]

速度で2分間蒸着した。

上記実施の形態 2 - 1、 2 - 2の有機発光素子は、発光領域を多 孔質化あるいは粗面化することにより、発光効率を向上させたもの 20 であるが、本実施の形態 2 - 3では、電荷輸送領域を粗面化した構 成の有機発光素子に関して説明する。図 2 0 は、本発明の実施の形態 2 - 3 に係る有機発光素子の概略断面図である。

図20に示すように、有機発光素子115は、陽極105と、上記陽極105に大力向配置された陰極101と、上記陽極105と上25 記陰極101との間に配置された発光領域117と、該発光領域117と上記陽極105との間に配置された電荷輸送層116と、を備えた構成である。

上記電荷輸送層116の上記発光領域117側はドライエッチングによって粗面化されている。尚、上記構成の場合、上記電荷輸送

層116は、ホール輸送層である。

20

このような構成とすることによって、発光領域117と電荷輸送領域116との接触面積が向上し、陽極105から発光領域117に注入されるホールの注入効率が向上する。

5 尚、本実施の形態では、電荷輸送領域を粗面化した構成について説明したが、上記電荷輸送領域を多孔質化することによっても、粗面化した場合と同様の効果を達成することができるのは、勿論である。また、上記電荷輸送層116が発光特性を有する場合には、上記発光領域117は必要は必ずしも必要はなく、電荷輸送層116の陽極105側あるいは陰極101側の少なくとも一方を、多孔質化あるいは粗面化することにより、上記と同様に電極からの電荷の注入効率が向上する。

産業上の利用可能性

15 以上に説明したように、本発明の構成によれば、本発明の課題を 十分に達成することができる。

即ち、第1の発明群の発明によれば、ポリマーあるいは電荷輸送材を分散したポリマーに発光分子、あるいは発光分子及び電荷輸送材を浸透させることにより、ポリマー分散型の有機発光素子においても、高い発光効率を実現すると同時に容易にパターニングができるの機発光素子を提供することができる。

また、第2の発明群の発明群によれば、高分子系有機発光素子において、従来、有機層全体に拡散していた発光領域を特定領域に集約し、発光分子の存在するホールと電子の再結合領域を多孔質化あ25 るいは粗面化し表面積を増大させることにより、高輝度発光を実現することができる。



請 求 の 範 囲

1. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、

上記発光領域は、発光に寄与する物質と該物質を含有するための 媒体とからなり、

上記発光に寄与する物質は、上記発光領域の上記陽極側から上記陰極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴とする発光素子。

- 10 2. 上記発光に寄与する物質は、上記発光領域の上記陽極側または上記陰極側のうちいずれか一方側が他方側よりも高濃度となるような濃度分布を示し、上記一方側から他方側へ連続的に濃度が減少している構成であることを特徴とする請求項1に記載の発光素子。
- 15 3. 上記発光領域は、更に、電荷輸送性物質を含むことを特徴と する請求項1に記載の発光素子。
- 4. 上記電荷輸送性物質は、上記発光領域の上記陽極側から上記 陰極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴 20 とする請求項3に記載の発光素子。
 - 5. 陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子であって、

上記電荷輸送領域は、電荷輸送性物質と該電荷輸送性物質を含25 有するための媒体とからなり、

上記電荷輸送性物質は、上記電荷輸送領域の上記陰極側から陽極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴とする発光素子。

6. 上記発光領域は、上記発光に寄与する物質が存在しない領域を有することを特徴とする請求項1に記載の発光素子。

- 7. 上記発光領域中の、上記発光に寄与する物質の最大濃度を示す部分は、上記陽極および上記陰極から離れていることを特徴とする請求項1に記載の発光素子。
 - 8. 上記電荷輸送領域は、上記電荷輸送性物質が存在しない領域を有することを特徴とする請求項5に記載の発光素子。

9. 上記電荷輸送領域中の、上記電荷輸送物質の最大濃度を示す部分は、上記陽極および上記陰極から離れていることを特徴とする請求項5に記載の発光素子。

10

- 15 1 0 . 請求項1 に記載の発光素子を用いたことを特徴とする照明 装置。
- 1 1. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、 上記発光領域は、発光に寄与する物質と該物質を含有するための 20 媒体とよりなり、

上記陰極面および上記陽極面に平行な方向において、上記発光に寄与する物質の濃度は、上記発光領域の略中央から周辺へ向けて略連続的に減少することを特徴とする発光素子。

25 12. 前記発光に寄与する物質を、上記陰極面および上記陽極面 に平行な方向に、隣接して複数有する構成であり、該複数の発光に 寄与する物質の発光色はそれぞれ異なることを特徴とする請求項1 1に記載の発光素子。

13. 上記発光領域は、更に、電荷輸送性物質を含むことを特徴とする請求項11に記載の発光素子。

- 14. 上記電荷輸送性物質の濃度は、上記陰極面および上記陽極 面に平行な方向において、上記発光領域の略中央から周辺へ向けて減少することを特徴とする請求項13に記載の発光素子。
- 15. 上記発光に寄与する物質は、上記発光領域の上記陰極側から上記陽極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であること 10 を特徴とする請求項11に記載の発光素子。
 - 16.上記電荷輸送性物質は、上記発光領域の上記陰極側から上記陽極側に向けて、略連続的に濃度分布をもつ構成であることを特徴とする請求項14に記載の発光素子。

15

- 17. 上記発光領域は、上記発光に寄与する物質が存在しない領域を有することを特徴とする請求項11に記載の発光素子。
- 18. 上記発光に寄与する物質を含有するための媒体が、電荷輸20 送性能を有することを特徴とする請求項11に記載の発光素子。
 - 19. 上記発光に寄与する物質を含有するための媒体が、有機物からなることを特徴とする請求項11に記載の発光素子。
- 25 20. 上記媒体がポリマーからなることを特徴とする請求項11 に記載の発光素子。
 - 21.請求項11に記載の発光素子を用いたことを特徴とする表示装置。

22. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、

上記陽極あるいは陰極上に媒体を配置する配置工程と、

5 上記媒体中に発光に寄与する物質を含有させて発光領域を形成する含有工程と、

を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

2 3 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法10 であって、

上記陽極あるいは陰極上に電荷輸送性物質を含有する媒体を配置する配置工程と、

上記媒体中に発光に寄与する物質を含有させて発光領域を形成する含有工程と、

- 15 を有することを特徴とする発光素子の製造方法。
 - 24. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、

上記陽極あるいは陰極上に媒体を配置する配置工程と、

20 上記媒体中に発光に寄与する物質及び電荷輸送性物質を含有させ る含有工程と、

を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

2 5. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法 25 であって、

上記陽極あるいは陰極上に電荷輸送性物質を含有する媒体を配置する配置工程と、

上記媒体中に発光に寄与する物質及び電荷輸送性物質を含有させる含有工程と、

を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

26.陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子の製造方法であって、

5 上記陽極あるいは陰極上に媒体を配置する配置工程と、

上記媒体中に電荷輸送性物質を含有させる含有工程と、を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

- 27. 上記含有工程において、上記発光に寄与する物質を上記媒 10 体中に浸透させることによって含有させることを特徴とする請求項 23に記載の発光素子の製造方法。
- 28. 上記含有工程において、上記発光に寄与する物質および上記電荷輸送性物質を媒体中に浸透させることによって含有させることを特徴とする請求項24に記載の発光素子の製造方法。
 - 29. 上記含有工程において、上記発光に寄与する物質を溶媒に溶かして得られた溶液を、上記媒体に接触させることにより浸透させることを特徴とする請求項23に記載の発光素子の製造方法。

20

30.上記含有工程において、上記発光に寄与する物質および上記電荷輸送性物質を溶媒に溶かして得られた溶液を、上記媒体に接触させることにより浸透させることを特徴とする請求項24に記載の発光素子の製造方法。

25

31. 上記含有工程において、上記媒体中に発光に寄与する物質をインクジェット法により浸透させることを特徴とする請求項27に記載の発光素子の製造方法。

32. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、上記発光領域は発光に寄与する物質を含み、

上記陽極と上記陰極との間には、上記発光に寄与する物質を特定 の領域に集約するための集約化手段を有することを特徴とする発光 5 素子。

- 33. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、 上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が多 孔質化されており、
- 10 上記発光領域の多孔質化された表面に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴とする発光素子。
- 3 4. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、 上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が多 15 孔質化されており、

上記発光領域の多孔質化された表面近傍に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴とする発光素子。

- 3 5 . 上記発光領域の多孔質化された表面に電荷輸送性物質を有 20 する構成であることを特徴とする請求項 3 3 に記載の発光素子。
 - 36. 上記発光領域の多孔質化された表面に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を有する構成であることを特徴とする請求項33に記載の発光素子。

37. 陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子であって、

25

上記電荷輸送領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が多孔質化された構成であることを特徴とする発光素子。

38. 上記電荷輸送領域は、ホール輸送領域であることを特徴とする請求項37に記載の発光素子。

- 5 39. 上記電荷輸送領域は、電子輸送領域であることを特徴とする請求項37に記載の発光素子。
 - 4 0 . 上記発光領域が有機物からなることを特徴とする請求項33に記載の発光素子。
- 41. 上記発光領域がポリマーからなることを特徴とする請求項33に記載の発光素子。

10

25

42. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、 上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が粗 面化されており、

上記発光領域の粗面化された表面に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴とする発光素子。

20 43. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子であって、 上記発光領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が粗 面化されており、

上記発光領域の粗面化された表面近傍に発光に寄与する物質を有する構成であることを特徴とする発光素子。

44. 上記発光領域の粗面化された表面に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を有することを特徴とする請求項42に記載の発光素子。

4 5. 陽極と陰極との間に電荷輸送領域を有する発光素子であって、

上記電荷輸送領域の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方が粗面化された構成であることを特徴とする発光素子。

5

- 4 6 . 上記電荷輸送領域は、ホール輸送領域であることを特徴とする請求項45に記載の発光素子。
- 4 7. 上記電荷輸送領域は、電子輸送領域であることを特徴とす10 る請求項45に記載の発光素子。
 - 4 8 . 上記発光領域が有機物からなることを特徴とする請求項 4 2 に記載の発光素子。
- 49. 上記発光領域がポリマーからなることを特徴とする請求項42に記載の発光素子。
 - 5 0 . 請求項33に記載の発光素子を用いたことを特徴とする表示装置。

20

- 5 1. 請求項33に記載の発光素子を用いたことを特徴とする照明装置。
- 5 2. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法 25 であって、

上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、 上記媒体の少なくとも一部を多孔質化する多孔質化工程と、 を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

53. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、

上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、 上記媒体の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方を多孔質 化する多孔質化工程と、

上記媒体の多孔質化された表面に、発光に寄与する物質を配置し、 上記媒体と上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する配置工程と、

を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

10

5

5 4. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、

上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、

上記媒体の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方を多孔質15 化する多孔質化工程と、

上記媒体の多孔質化された表面近傍に、発光に寄与する物質を含有し、上記媒体と上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する合有工程と、

上記発光領域の多孔質化された表面に電荷輸送性物質を配置する 20 配置工程と、

を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

- 5 5 . 上記発光領域の多孔質化された表面に、電荷輸送性物質を配置する配置工程を有することを特徴とする請求項 5 3 に記載の発 25 光素子の製造方法。
 - 5 6 . 上記発光領域上に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を形成する平坦化層形成工程を有することを特徴とする請求項 5 3 に記載の発光素子の製造方法。

57. 上記配置工程は、特定の溶媒に可溶な物質を含有する媒体を配置する工程であり、

上記多孔質化工程は、上記溶媒により上記物質を溶出することに 5 より多孔質化を行う工程であることを特徴とする請求項 5 3 に記載 の発光素子の製造方法。

58. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、

10 上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、 上記媒体の一部を粗面化する粗面化工程と、 を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

5 9. 陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法 15 であって、

上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、上記媒体の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方を粗面化する粗面化工程と、

上記媒体の粗表面に、発光に寄与する物質を配置し、上記媒体と 20 上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する配置工程と、 を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

60.陽極と陰極との間に発光領域を有する発光素子の製造方法であって、

25 上記陽極あるいは上記陰極上に媒体を配置する媒体配置工程と、 上記媒体の陽極側あるいは陰極側のうち少なくとも一方を粗面化 する粗面化工程と、

上記媒体の粗表面近傍に、発光に寄与する物質を含有させ、上記媒体と上記発光に寄与する物質とにより発光領域を形成する含有工

程と、

を有することを特徴とする発光素子の製造方法。

6 1 . 上記発光領域上に、電荷輸送性物質からなる平坦化層を形 5 成する平坦化層形成工程を有することを特徴とする請求項 5 9 に記載の発光素子の製造方法。

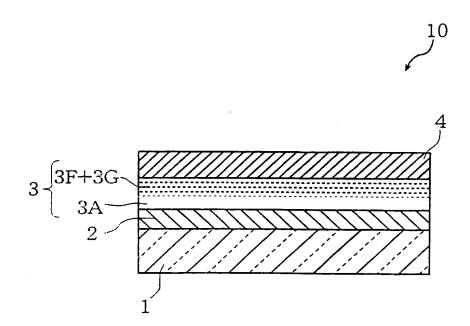
62. 上記粗面化工程は、ドライエッチングにより上記発光領域を粗面化する工程であることを特徴とする請求項 59 に記載の発光 10 素子の製造方法。

15

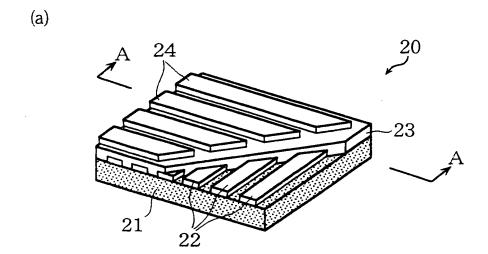
20

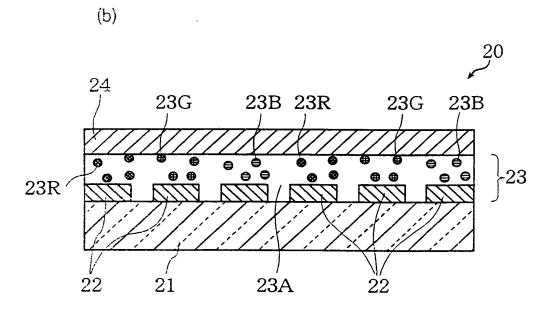
25

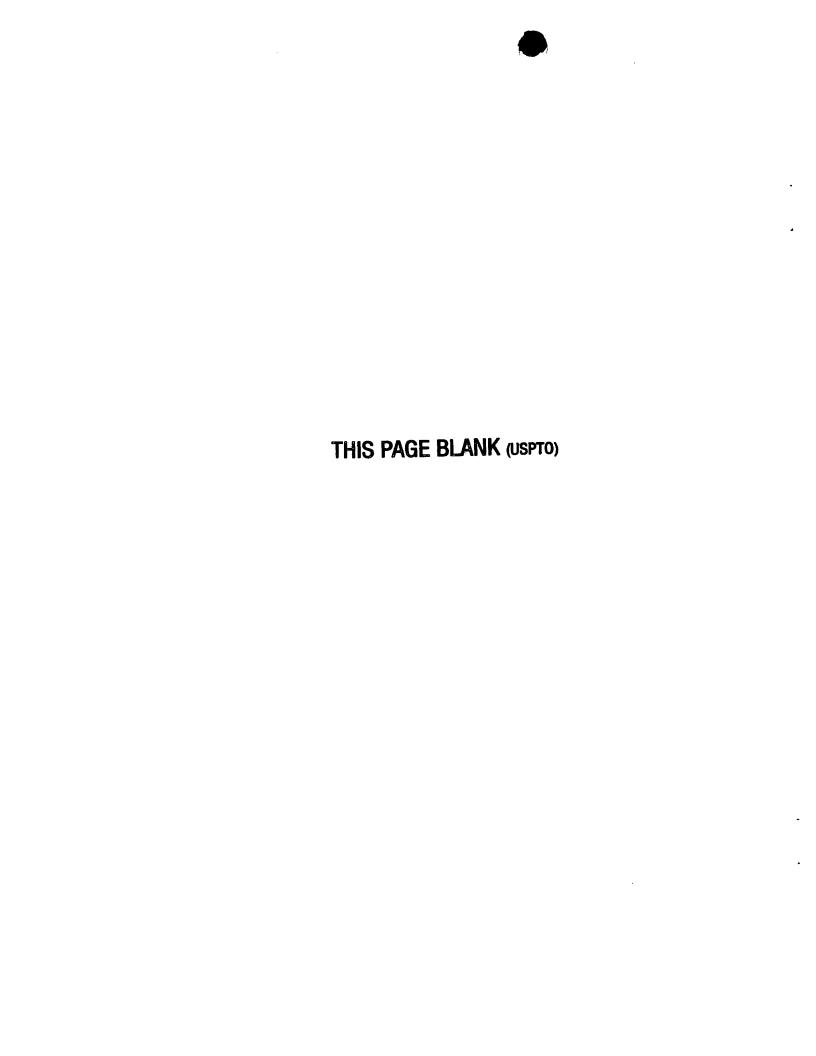
THIS PAGE BLANK (USPTO)

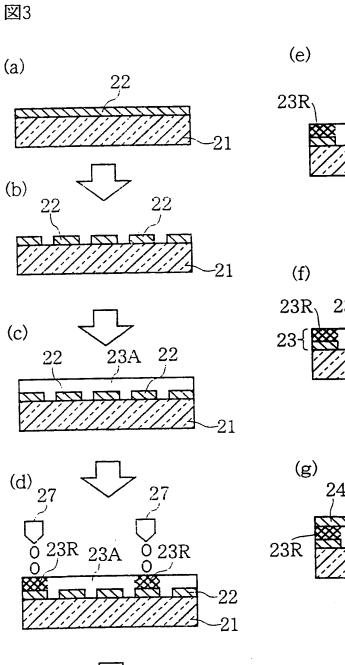


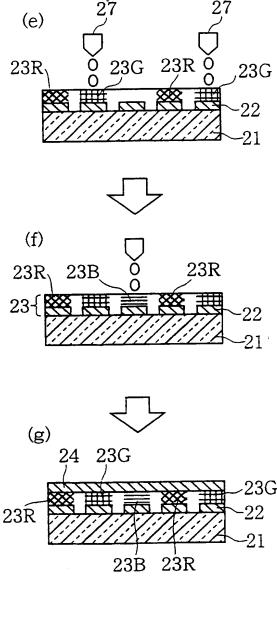
THIS PAGE BLANK (USPTO)

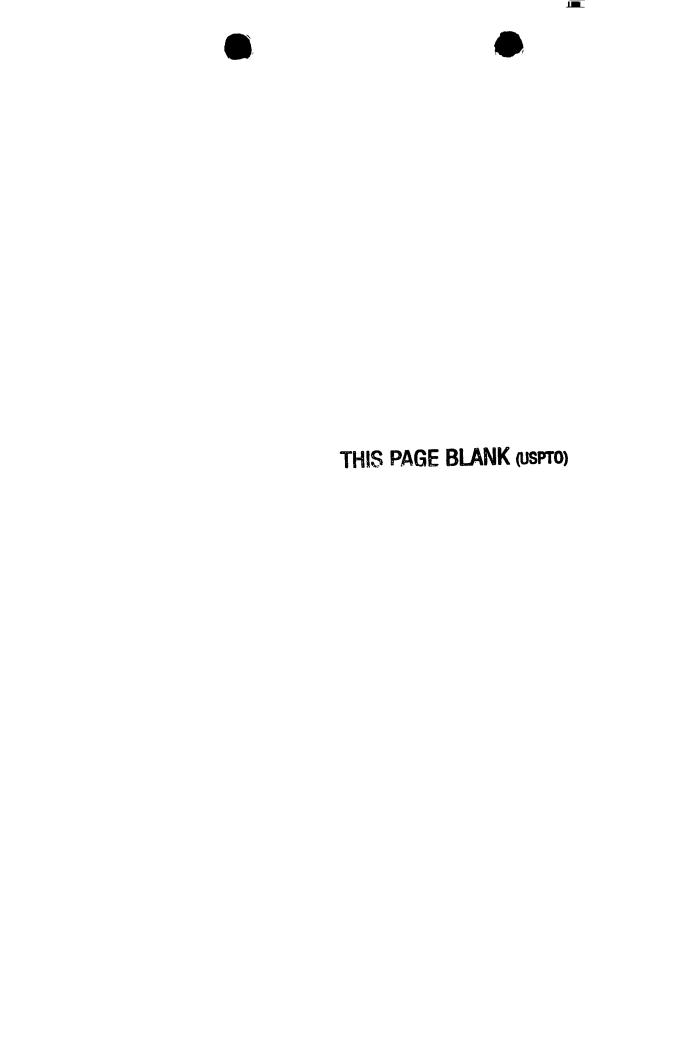


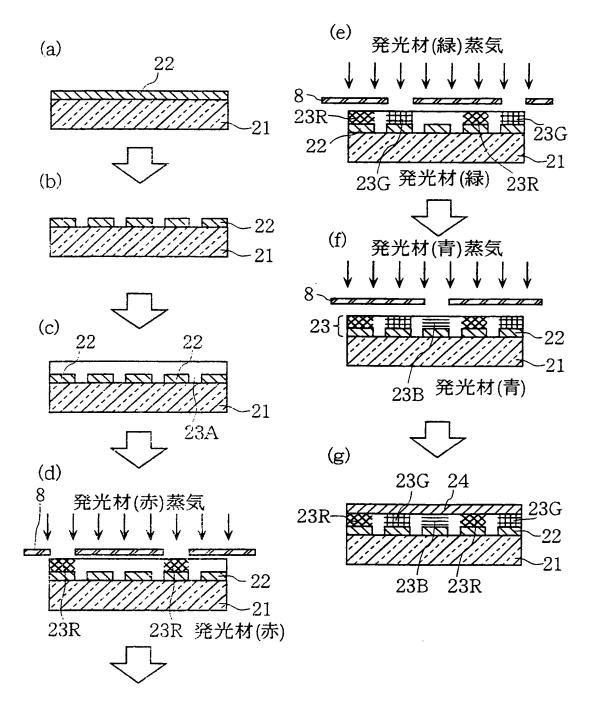




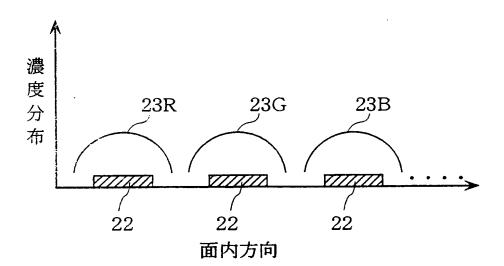




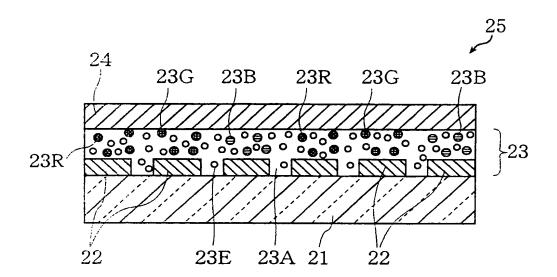




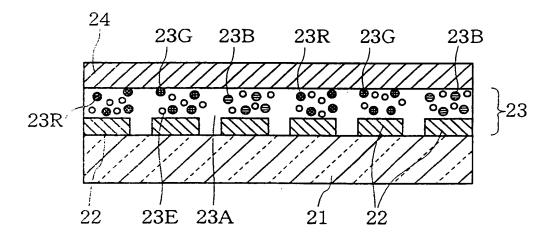


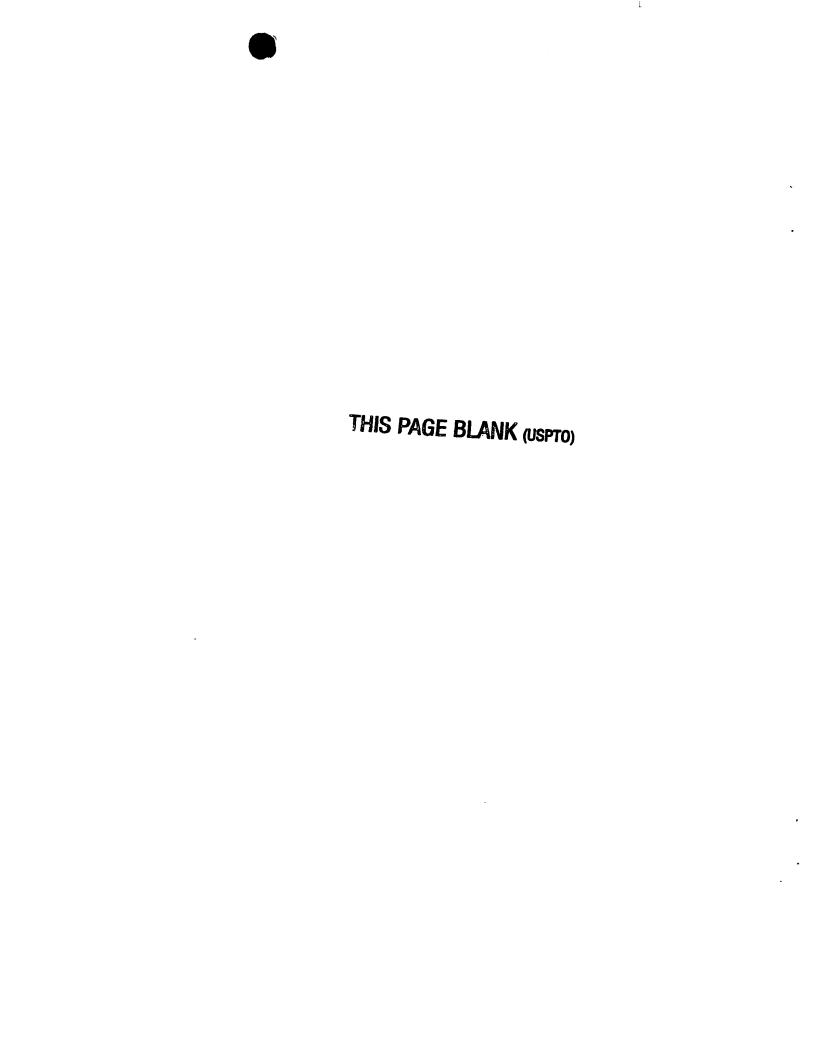


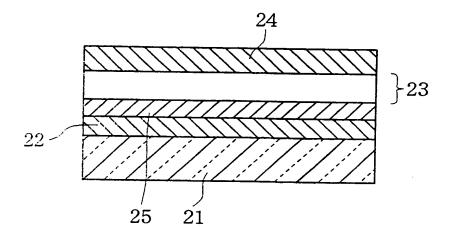
THIS PAGE BLANK (USPTO)



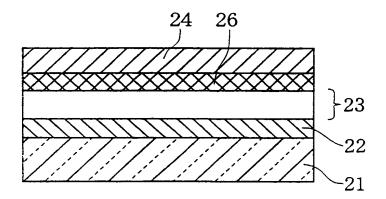




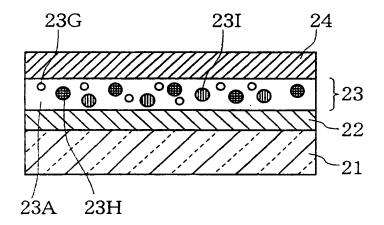




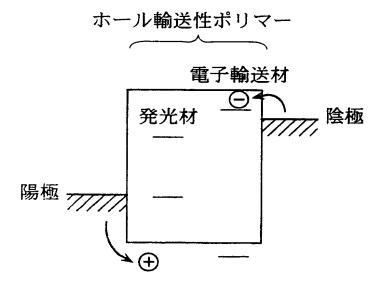
THIS PAGE BLANK (USPTO)



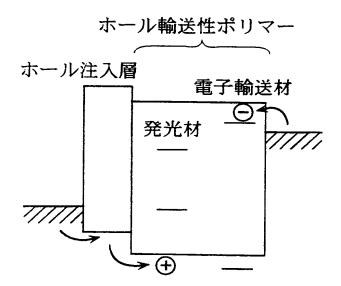




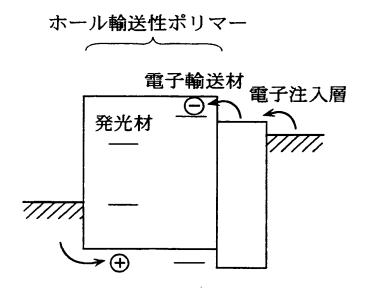


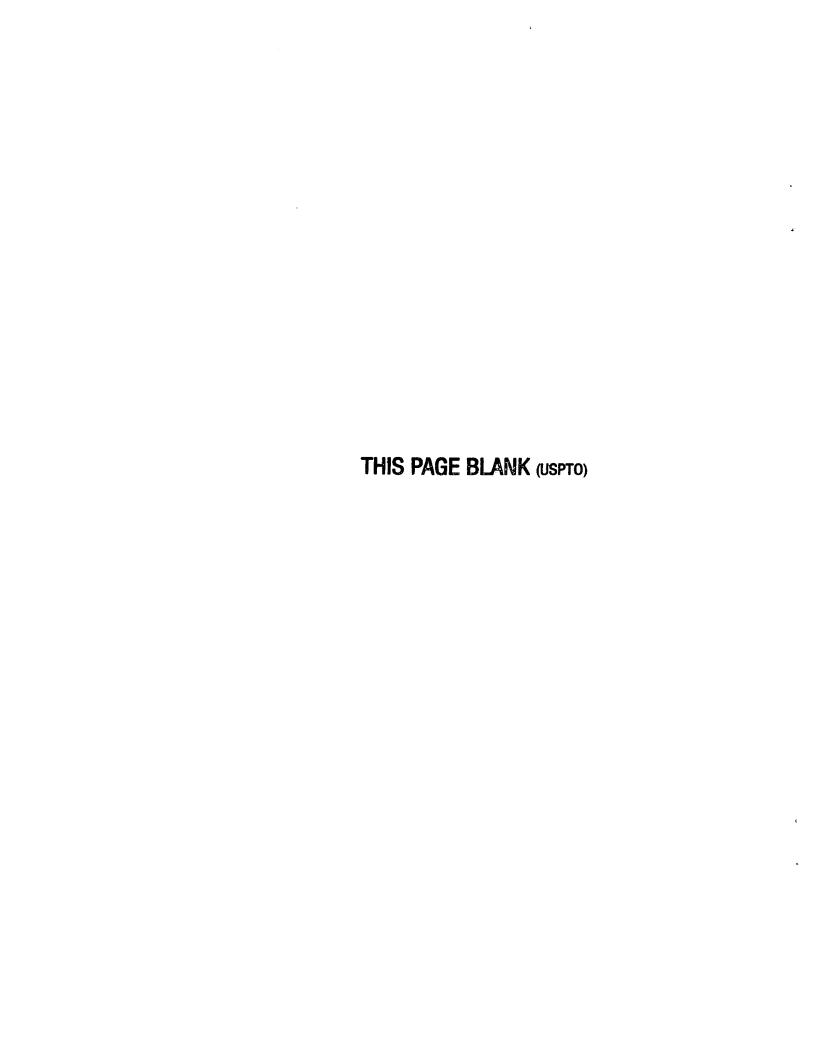


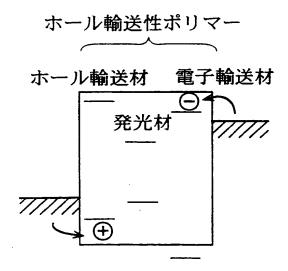


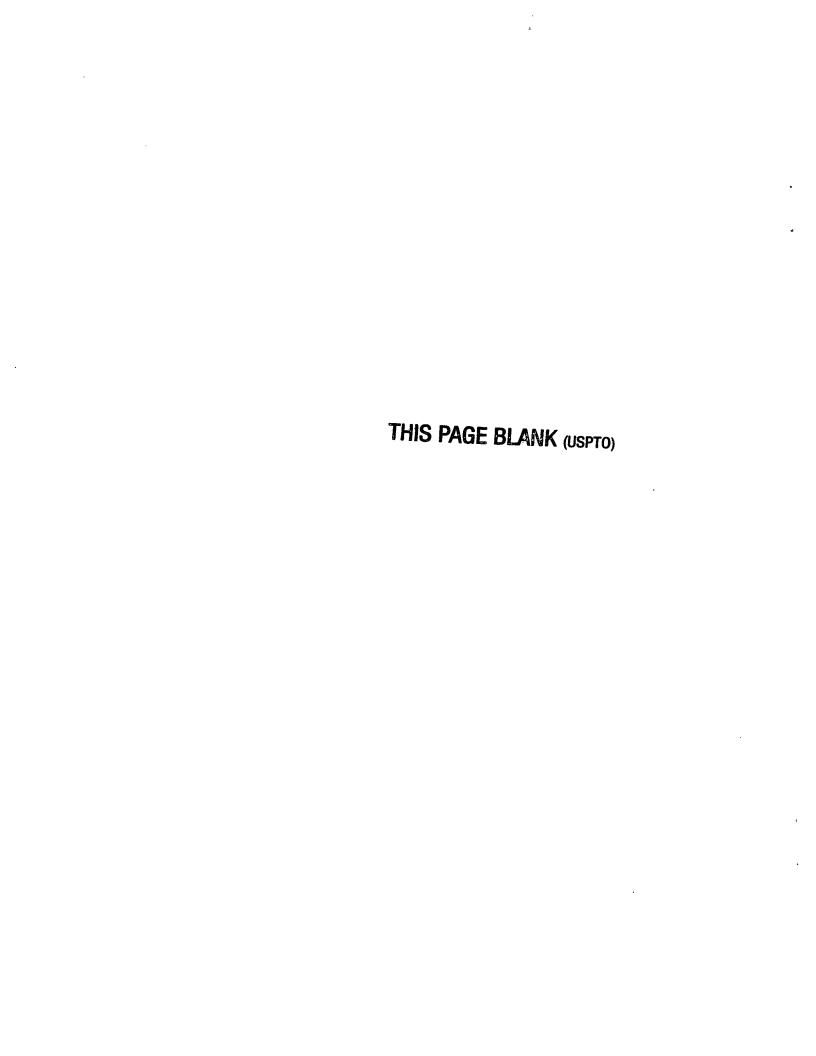


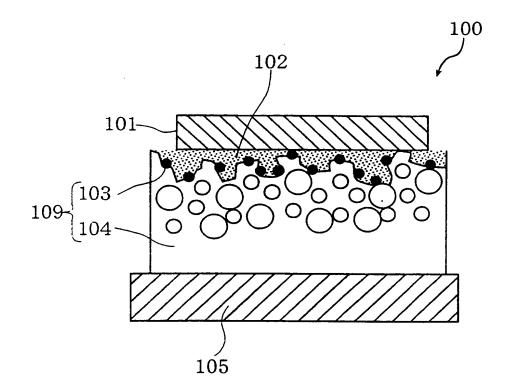
THIS PAGE BLANK (USPTO)











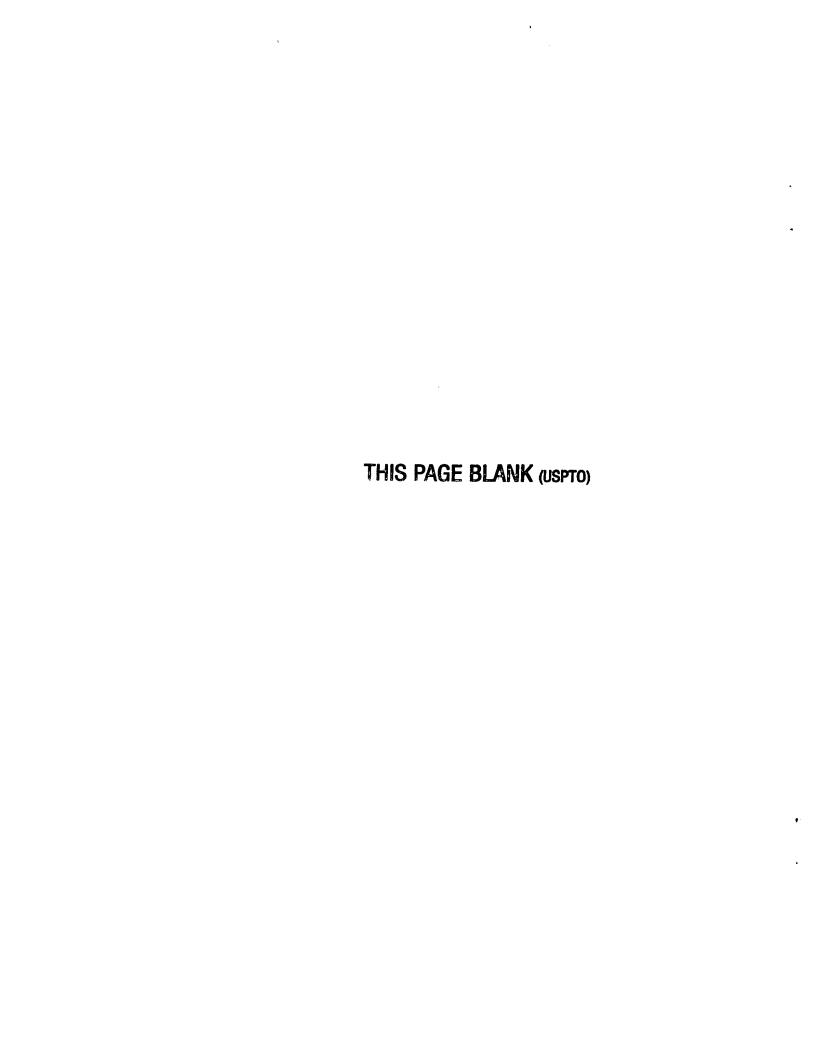
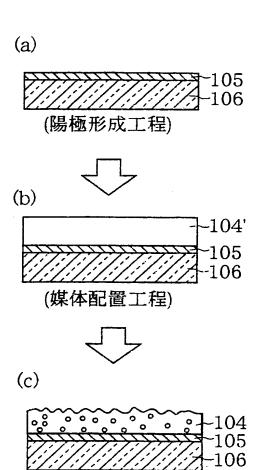
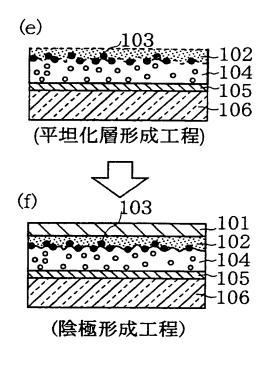
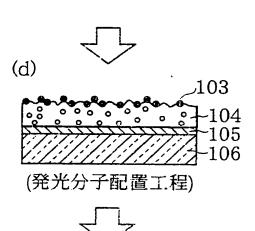


図16



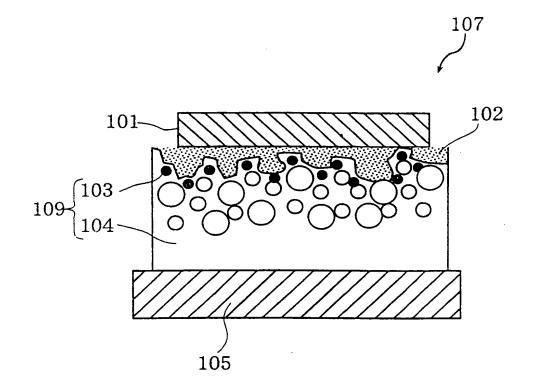


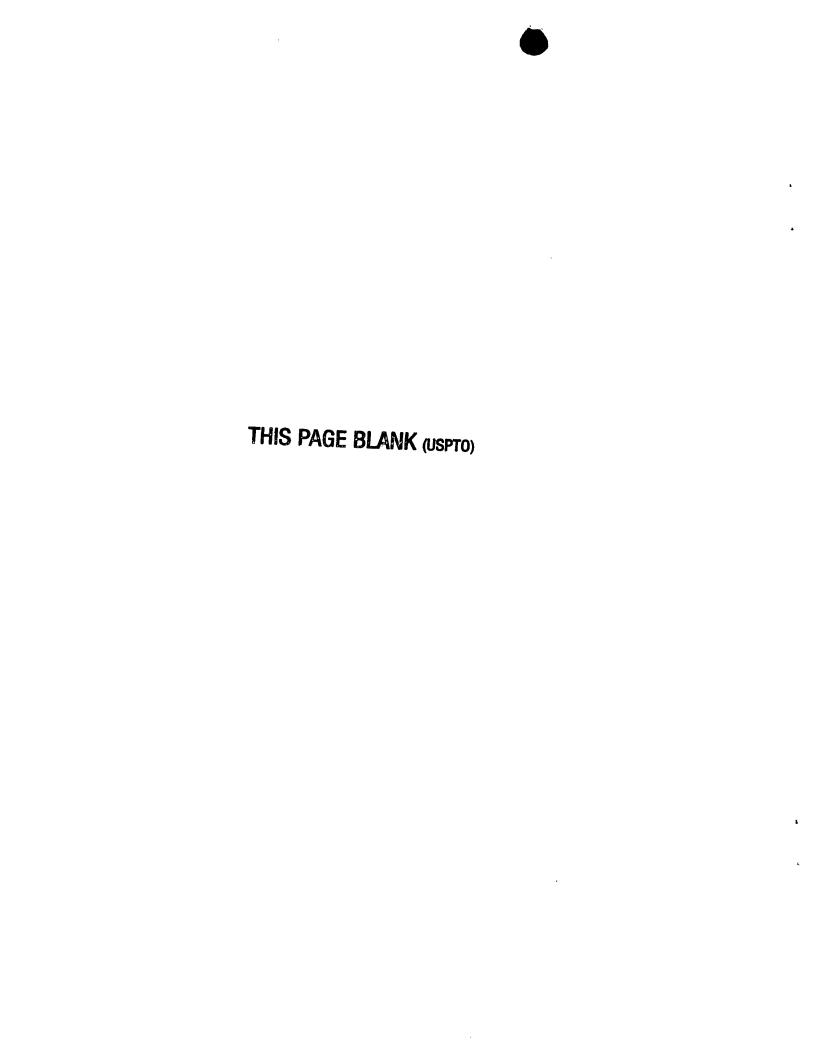


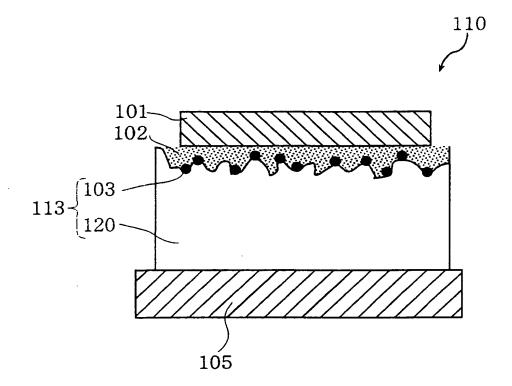
(多孔質化工程)

THIS PAGE BLANK (USPTC)

図17

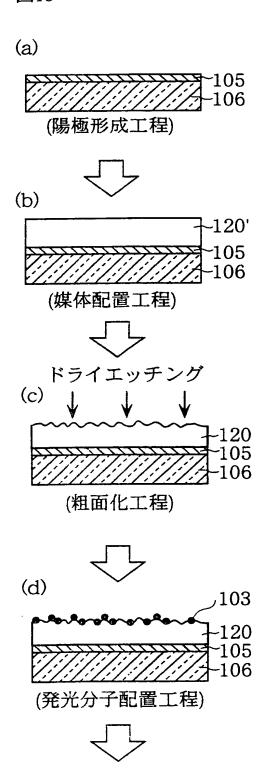


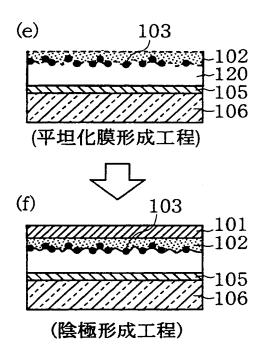




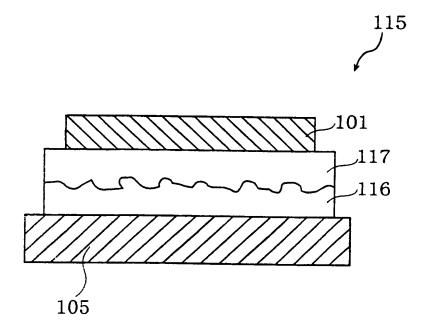








THIS PAGE BLANK (USPTO)



THIS PAGE BLANK (USPTO)